

Adsorbatinduzierte Domänenwandordnung auf Silizium(111)

Dem Fachbereich Physik der Universität
Duisburg-Essen zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

Dr. rer. nat.
vorgelegte Dissertation
von

Dipl. Phys. Christoph Seifert
geboren am 24.02.1972
in Hannover
2006

1. Gutachter: Prof. Dr. Horn-von Hoegen, Michael
2. Gutachter: Prof. Dr. Möller, Rolf

Tag der mündlichen Prüfung: 14.09.2006

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe.

Essen, den 27. April 2006

Inhaltsverzeichnis

1	Silizium(111)-Ausgangsfläche	3
1.1	Diamantstruktur	3
1.2	Volumenterminierte Geometrie und Rekonstruktion	5
1.3	Notation für Rekonstruktionen	6
1.4	(7×7) -Rekonstruktion	7
2	Grundlagen der Elektronenbeugung	9
2.1	Prinzip der Elektronenbeugung	9
2.2	Laue Bedingung	11
2.3	Reziprokes Gitter	12
2.4	Ewaldkugel	13
2.5	SPA-LEED	14
3	Grundlagen der Rastertunnelmikroskopie	17
3.1	Messprinzip	17
3.2	Die Theorie	18
3.2.1	Der eindimensionale Tunneleffekt	18
3.2.2	Übergangsmatrix nach Bardeen	19
3.2.3	Theorie nach Tersoff und Hamann	21
3.3	Die Praxis	22
3.3.1	Constant-Current-Mode	22
3.4	Bildbearbeitung und Bildauswertung	26
4	Experimentelles	28
4.1	Vakuumapparatur	28
4.1.1	Notwendigkeit eines guten Vakuums	28
4.1.2	Erzeugung von Ultrahochvakuum	31
4.1.3	Schleuse	32
4.2	Das Rastertunnelmikroskop	32
4.2.1	Regelung und Bildverzerrung	34
4.2.2	Spitzenpräparation	35

4.2.3	In situ Änderung der Spitze	35
4.2.4	Kalibrierung des Tubescanners	36
4.3	Probenhalter	37
4.4	Präparation einer reinen Siliziumoberfläche	37
4.5	Temperaturmessung	39
4.6	Verdampferquellen	39
4.6.1	Details zu verwendeten Elektronenstrahlverdampfern	40
4.7	Kalibrierung der Goldbedeckung	41
5	Domänenwandordnung	43
5.1	Au-Adsorption im Submonolagenbereich	44
5.2	(5×2) -Rekonstruktion	47
5.2.1	Beugungsbild der (5×2) -Rekonstruktion	47
5.2.2	Modulation des Beugungsbilds im Übergangsbereich zur $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$	49
5.2.3	Analyse der Streifen der (5×2) -Rekonstruktion im Beu- gungsbild	55
5.2.4	Atomares Bild der (5×2) -Rekonstruktion	58
5.2.5	Phasenverschiebungen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche	61
5.2.6	Spiegeldomänen	61
5.2.7	Atomares Bild der (5×2) -Rekonstruktion in Koexis- tenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase	68
5.2.8	Die Adatome der (5×2) -rekonstruierten Bereiche	71
5.2.9	Goldadatome und Spiegeldomänen	74
5.2.10	Rolle der Adatome im Beugungsbild	80
5.2.11	Analyse der Adatomkorrelationen in (5×2) -rekonstruierten Bereichen	82
5.2.12	Simulation des Beugungsbilds der (5×2)	103
5.2.13	Diskussion der Simulationsergebnisse	125
5.3	$(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion	126
6	Dynamik des Wachstums der (5×2)-Phase	130
6.1	Keimbildung der (5×2)	130
6.2	Bestimmung des Siliziumanteils	134
6.2.1	Verfahren von Shibata et al.	135
6.2.2	Auswertung	136
6.2.3	Einfluss von Stufen auf die Auswertung	136
6.2.4	Diskussion Fehlerquellen	140
6.2.5	Diskussion	141
6.3	Präparationstemperaturabhängigkeit der Domänenengröße	141

6.4	Tempertemperaturabhängigkeit der Domänenengröße	143
6.5	Domänenverdrängung	145
6.5.1	Experimenteller Befund	145
6.5.2	Energetik des Randbereichs	146
6.5.3	Translationsversatz im Berührungspunkt	149
6.6	Auswahl einer (5×2) -Domänenrichtung	150
7	Modelle der (5×2)-Rekonstruktion	155
7.1	Einführung	155
7.2	Experimentelle Befunde zur (5×2) -Rekonstruktion	156
7.3	Das HCC Modell	158
7.3.1	Rolle der Phasenverschiebungen	160
7.4	DHCC-Modell der (5×2) -Rekonstruktion nach Erwin	161
7.5	Ein neues Modell für die (5×2) -Rekonstruktion	164
7.5.1	Neues Modell – Modell 47	166
7.5.2	Phasengrenzenmodelle	169
7.5.3	Neuinterpretation der Adatomrolle	169
A	Abkürzungsverzeichnis	176

Einleitung

Die moderne Oberflächenphysik hat sich als eine Spezialdisziplin der Festkörperphysik seit den 1960er Jahren aus den Fragestellungen der stark oberflächensensitiven CMOS-Technologie in der Halbleiterbranche entwickelt und ist mittlerweile etabliert. Ein Teil dieses Gebiets ist die Untersuchung von Rekonstruktionen. Dies sind Neuordnungen einer Oberfläche unter Temperatur- und/oder Adsorbateinfluss. Dies beinhaltet unausgesprochen die weitgehende Beschränkung auf kristalline Festkörper und Oberflächen, d.h. regelmäßige Anordnungen und eine möglichst saubere Umgebung in einem Ultrahochvakuum (UHV) für die Experimente.

Da die Qualität jeder Grenzfläche – z.B. eines Metall-Halbleiterkontakts bei einem Computerchip – und jedes auf einer Kristalloberfläche aufgewachsenen Films von der Art der Präparation der ersten Lage abhängt, sind Untersuchungen der sich bildenden Rekonstruktionen wichtig. In der Oberflächenphysik werden allerdings nicht nur die anfängliche Bildung von Kontaktflächen makroskopischer Leiterkontakte, sondern auch die Möglichkeiten untersucht, diese Leiter gleichsam wie von selbst in einem "Bottom-Up"-Prozess synthetisch entstehen zu lassen. Dabei wird das selbstorganisierte Wachstum – engl. auch häufig "self-assembly" genannt – kleinster Strukturen auf der Oberfläche unter geschickter Auswahl von Prozessparametern wie Temperatur und Adsorbateilchenfluss ausgenutzt. Der aktuelle Ansatz in der Halbleiterindustrie ist der eines "Top-Down" Prozesses, bei dem in sehr aufwendigen Schritten eine Struktur aus einem Festkörper herausgearbeitet wird. Dies lässt sich prägnant als der Gegensatz zwischen Lego- und Steinmetzprinzip herausstellen. "Bottom-Up"-Prozesse werden um so interessanter, je kleiner die Computerchipstrukturen nach "Moore's Law" und der Roadmap

der Halbleiterindustrie werden sollen.

In dieser Arbeit wird die goldinduzierte (5×2) -Rekonstruktion auf der Si(111)-Oberfläche als Vertreterin einer ganzen Familie von ähnlichen adsorbatinduzierten Rekonstruktionen vorgestellt. (5×2) -rekonstruierte Bereiche wachsen stark anisotrop – gleichsam als sehr schmale Drähte – auf der Oberfläche. Durch geeignete Wahl der Stufenausrichtung auf einer Probe kann eine der drei möglichen Rotationsdomänen ausgewählt werden. Durch eine starke Erhöhung der Stufendichte kann der eindimensionale Charakter dieser Familie von Rekonstruktionen verstärkt werden. Solche anisotrop gewachsenen Strukturen können als Vorlage – engl. "template" – für weiteres Wachstum benutzt werden, wie z.B. im Fall von Silber auf Indium-induzierter (4×1) -Rekonstruktion auf der Si(111)-Oberfläche berichtet [91].

Ganz allgemein bildet Gold von den Übergangsmetallen die vielfältigsten Strukturen bei der Adsorption auf der Si(111)-Oberfläche aus. Im Gegensatz zu den anderen Übergangsmetallen weisen alle bekannten goldinduzierten Rekonstruktionen nach Abkühlen auf Raumtemperatur goldreiche Domänenwände auf. Dies wird für die (5×2) -Rekonstruktion in dieser Arbeit gezeigt.

Die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit sind mit Hilfe einer hochauflösenden Elektronenbeugungsmethode für eine globale Charakterisierung in Kombination mit lokalen Bildern eines Rastertunnelmikroskops gemacht worden. Beugungsmethoden zeigen sehr gut die Periodizität von Strukturen auf der Oberfläche, während Rastersondenmethoden Defekte in dieser periodischen Anordnung untersuchen können. Dies ist gerade für die in dieser Arbeit untersuchte (5×2) -Rekonstruktion mit ihren vielfältigen Defekten ideal, auf die in dieser Arbeit detailliert eingegangen wird. Einfache Computersimulationen von Gittern mit Störungen der Periodizität werden als Bindeglied zwischen lokalen Aufnahmen und Beugungsbildern präsentiert.

Kapitel 1

Silizium(111)-Ausgangsfläche

1.1 Diamantstruktur

Silizium ist ein Element aus der 4. Hauptgruppe und bildet vier kovalente sp^3 hybridisierte Verbindungen im tetraedischen Winkel von $109,5^\circ$ mit seinen nächsten Nachbarn im Abstand von $2,35 \text{ \AA}$ aus. Die resultierende Gitterstruktur von Silizium ist die Diamantstruktur, die man sich als Verschränkung zweier flächenzentrierter-Gitter (siehe Abb. 1.1) mit Gitterposition $(0,0,0)$ bzw. $(\frac{a}{4}, \frac{a}{4}, \frac{a}{4})$ vorstellen kann. Die Gitterkonstante a , die Kantenlänge einer Einheitszelle, von Silizium beträgt $5,43 \text{ \AA}$.

Mit einer periodischen Fortsetzung der Einheitszelle in den im Bild gezeigten Richtungen lässt sich ein perfekter, makroskopischer Siliziumkristall aufbauen. Wird ein Kristall gespalten, so bilden sich bevorzugt Flächen bestimmter Orientierung aus. Eine dieser Oberflächen ist die Si(111)-Oberfläche. Die mit den so genannten Miller Indizes übereinstimmenden Zahlen bezeichnen dabei den Ebenenvektor, der senkrecht auf der Fläche steht. Oberflächen, die nicht bevorzugt gebildet werden, müssen durch Schleifen erzeugt werden.

Die Dichte der Atome in der obersten Lage auf der (111)-Oberfläche beträgt $7,83 \cdot 10^{14} \text{ Atome/cm}^2$. Die Bedeckung der Oberfläche mit einem Adsorbat wird üblicherweise in dieser Dichte angegeben und als Monolage (ML) bezeichnet. Die zweite Atomlage befindet sich nur etwa $0,8 \text{ \AA}$ unterhalb der

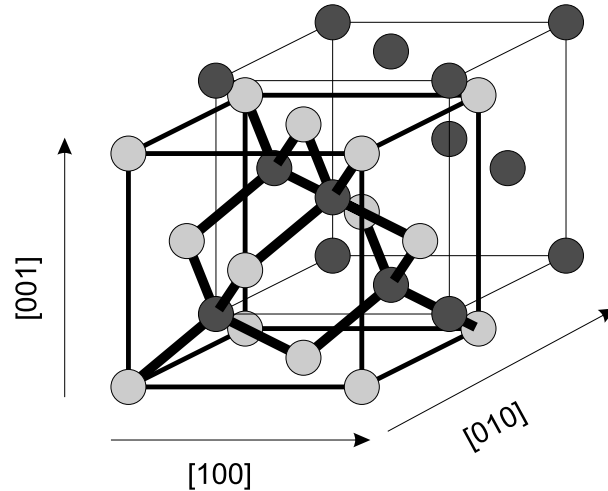


Abbildung 1.1: Einheitszelle für einen Diamantkristall, die als Verschränkung von zwei flächenzentrierten – engl. face-centered-cubic – Gittern behandelt werden kann. In einem flächenzentrierten Gitter sitzen Atome auf allen Eckpunkten eines Würfels, sowie zusätzlich in der Mitte der Seitenflächen. Die Atome der beiden Gitter sind hell- bzw. dunkelgrau eingezeichnet. Die (111)-Fläche schneidet die Zelle entlang der Raumdiagonalen. Weiterhin sind die Vektoren entlang der Kanten eingezeichnet. (aus [49])

ersten Lage, so dass oft auch die Größe Doppellage – engl. Bilayer (BL) = 2 ML benutzt wird. Insbesondere ist die Siliziumbedeckung für eine zusätzliche Ebene 1 BL. Der Abstand nächster Nachbarn auf der (111)-Oberfläche beträgt $3,84 \text{ \AA}$. Diese Größe wird im weiteren als Gitterkonstante bezeichnet. Die Richtungen auf der Oberfläche werden als Vektoren angegeben, wobei die gleichwertigen Hauptrichtungen entlang benachbarter Atome der ersten Lage $[1\bar{1}0]$, $[\bar{1}01]$ und $[01\bar{1}]$ sind.

Da ein Kristall nicht perfekt gebrochen oder geschliffen werden kann, muss ein Höhenunterschied über Stufen ausgeglichen werden, deren Höhe auf dieser Oberfläche $3,14 \text{ \AA}$ beträgt. Muss ein Azimuthalwinkel, d.h. ein dazu senkrechter Höhenunterschied ausgeglichen werden, so bilden sich Ecken in den ansonsten glatten Stufen – engl. "kinks".

Größe		Länge [Å]
Gitterkonstante des Volumens	a	5,43
Bindungsabstand zweier Si Atome	$r_0 = \frac{\sqrt{3}a}{4}$	2,35
Höhe einer Stufen auf Si(111) Oberfläche	$h = \frac{a}{\sqrt{3}}$	3,14
Gitterkonstante in der Si(111)-Ebene	$r = \frac{a}{\sqrt{2}}$	3,84

1.2 Volumenterminierte Geometrie und Rekonstruktion

Entsteht beim Spalten eines Siliziumkristalls eine (111)-Oberfläche, verbleiben für die Siliziumatome in der obersten Lage nur noch drei Bindungspartner – im englischen eine so genannte "truncated bulk Geometrie". Dies hat eine große Anzahl von ungesättigten und freien Bindungen – so genannte "dangling bonds" – auf der hexagonalen (111)-Oberfläche zur Folge – 1 pro Oberflächenatom. Da es energetisch günstigere Lösungen der Oberflächenstruktur gibt, rekonstruiert die Oberfläche. Dabei gibt es mehrere Mechanismen, die die Gesamtenergie der Oberfläche sowohl positiv, als auch negativ beeinflussen können. Davon werden die beiden wichtigsten hier vorgestellt.

- Verringerung der Anzahl freier Bindungen

Wie bei der Molekülbildung können freie Bindungen in eine neue Bindung eingehen und so die Gesamtenergie verringern.

- Oberflächenspannung

Für neue Bindungen zwischen Atomen, wie sie z.B. bei einer Dimerisierung auftreten, müssen Oberflächenatome aus Gleichgewichtslagen im Volumen entfernt werden, was zu einer Oberflächenverspannung führt. Diskutiert wurden die Prinzipien der verbundenen Energieänderung u.a. von Duke [17].

Energieänderung:

$$\frac{k_r}{2} \sum_{(ij)} (d\vec{r}_{ij})^2 \quad (1.1)$$

Dabei ist k_r die radiale Elastizitätskonstante und $d\vec{r}_{ij}$ die radiale Abstandsänderung zwischen den Atomen i und j.

Die Silizium(111)-Oberfläche rekonstruiert bei Freilegung bei Raumtemperatur zu einer (2×1) -Oberfläche mit abwechselnd gefüllten und nicht gefüllten Reihen freier Bindungen (π -bonded chain model - [61], [81], [82]). Auf diese wird hier nicht weiter eingegangen, da sich präparationsbedingt nur die (7×7) -Oberfläche (s.u.) als Rekonstruktion der reinen Si(111)-Oberfläche ausbildet.

Aufgrund der dreizähligen Symmetrie der Oberfläche gibt es zwei unterschiedliche Arten von Stufenkanten - Stufen mit Kanten senkrecht zur $[11\bar{2}]$ -Richtung weisen eine freie Bindung pro Kantenatom, Stufen senkrecht zur $[\bar{1}\bar{1}2]$ -Richtung weisen dagegen zwei freie Bindungen auf.

1.3 Notation für Rekonstruktionen

Rekonstruktionen einer Oberfläche werden üblicherweise in der Wood Notation beschrieben [94]. Dabei werden die Seitenlängen der Einheitszelle und deren Drehung gegenüber den Hauptrichtungen auf der Oberfläche angegeben.

Au/Si(111)- $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})R30^\circ$ bedeutet z.B., dass diese auf der Si(111)-Oberfläche mit Goldbedeckung induzierte Rekonstruktion eine Einheitszelle mit den Seitenlängen $\sqrt{3}$ Gitterkonstanten besitzt, die um 30° gegenüber den Hauptrichtungen gedreht – engl. R für rotated – ist. Der Winkel wird nur angegeben, wenn er von 0° abweicht. Weiterhin kann vor der Klammer ein p für eine primitive bzw. c für eine zentrierte – engl. c für centered – Einheitszelle vor die Klammer, z.B. $p(2 \times 2)$, gesetzt werden.

Die Notation nach Wood wird als Abkürzung verwendet, da eine korrekte Darstellung in Matrixform zwar die Ausrichtung der Seiten der Einheitszelle und deren Winkel zueinander korrekt wiedergibt, aber in der mündlichen Diskussion nicht verwendbar ist.

Eine Darstellung als Matrix M erfolgt in der Form, dass die neuen Gittervektoren \vec{b}_1, \vec{b}_2 für die Rekonstruktion in den Gittervektoren der unrekon-

struierten Oberflächen \vec{a}_1, \vec{a}_2 ausgedrückt werden:

$$\begin{pmatrix} \vec{b}_1 \\ \vec{b}_2 \end{pmatrix} = \underbrace{\begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix}}_M \begin{pmatrix} \vec{a}_1 \\ \vec{a}_2 \end{pmatrix}$$

1.4 (7×7) -Rekonstruktion

Die (7×7) -Rekonstruktion ist die energetisch günstigste Rekonstruktion der Si(111)-Oberfläche, die sich allerdings wegen des nötigen Materialtransports erst ab Temperaturen von etwa 600 °C ausbilden kann [21]. Das gültige Modell dieser Rekonstruktion ist das Dimer-Adatom-Stacking-fault (DAS, siehe Abb. 1.2) Modell von Takanayagi et al. [86], das in weiteren Messungen [85],[28] bestätigt werden konnte.

Die (7×7) -Rekonstruktion besitzt einschließlich der obersten Doppellage 102 Atome, also 4 % mehr Atome pro Einheitszelle als die unrekonstruierte Oberfläche. Bei niedrigen Temperaturen wird teilweise eine (5×5) -DAS Struktur gebildet, die keinen Materialtransport zur Bildung benötigt und eine nur unwesentlich höhere Energie als die (7×7) -Rekonstruktion besitzt [63]. In jeder Einheitszelle befinden sich 9 Dimere, 12 Adatome und eine Hälfte mit Stapelfehler, die durch die Drehung gegenüber dem Substrat um 180° bedingt ist. Die Anzahl der freien Bindungen hat sich von 49 auf 19 reduziert - 1 für jedes Adatom, 6 auf den Restatomen und 1 am Boden der markanten Ecklöcher am Rand der Einheitszelle. Die Hälften der Einheitszelle werden durch Kanten senkrecht zur $[\bar{1}\bar{1}2]$ Richtung getrennt.

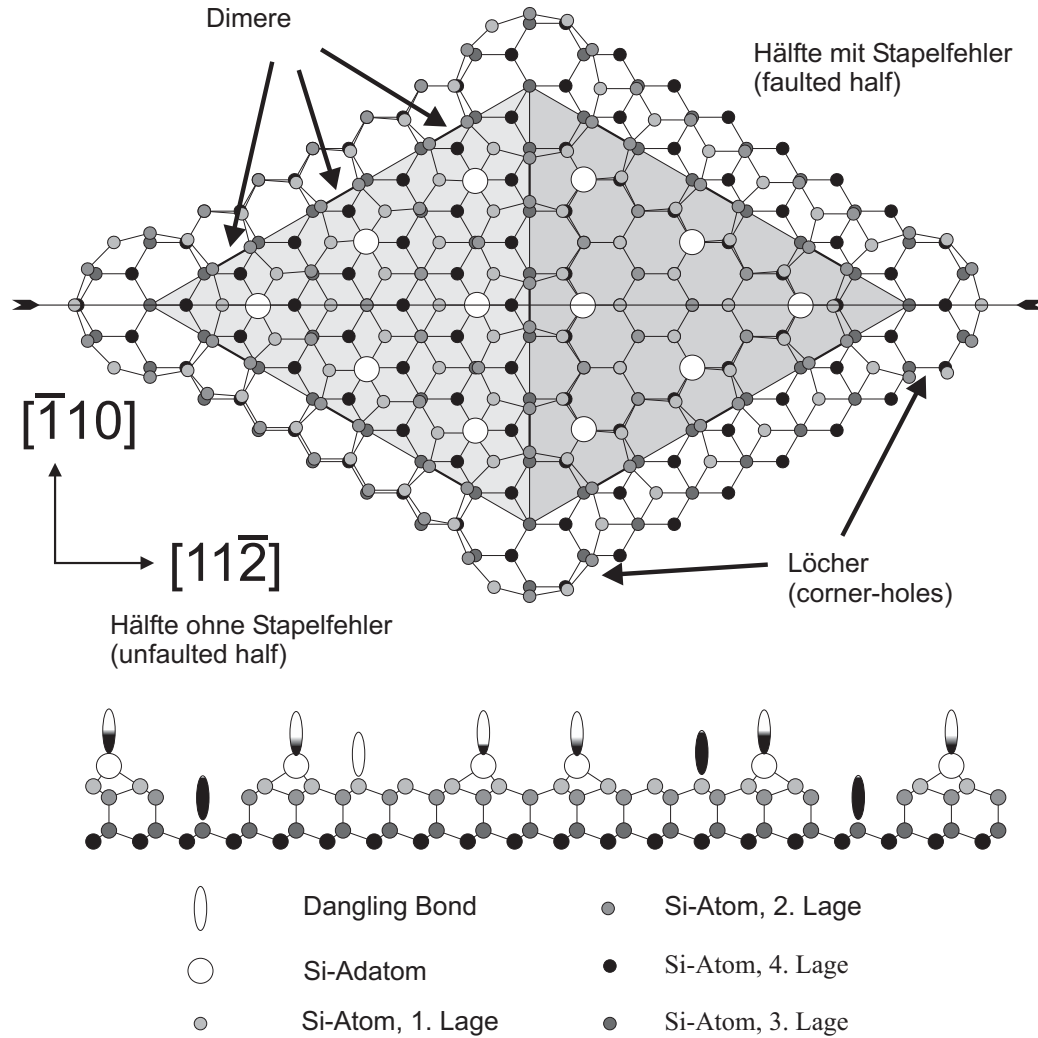


Abbildung 1.2: Das Dimer-Adatom-Stacking-fault(DAS)-Modell der (7×7) -Rekonstruktion. In der Hälfte mit dem Stapelfehler liegen zwei Lagen – die vierte und die dritte Lage – direkt übereinander. Im Rastertunnelmikroskop sind allein die markanten Löcher – so genannte "corner-holes" und die weiß markierten Adatome zu sehen. Die Adatome sind für bessere Sichtbarkeit deutlich größer als die restlichen Siliziumatome im Modell dargestellt. Im Querschnitt ist die Füllung der freien Bindungen mit Elektronen – unbesetzt, halb besetzt, voll besetzt – mit schwarzer Farbe angedeutet. Dabei ist zu sehen, dass die freien Bindungen in der Hälfte mit dem Stapelfehler höher besetzt sind. Das führt dazu, dass im Rastertunnelmikroskopbild besetzter Zustände die Hälfte mit dem Stapelfehler elektronisch erhöht erscheint.

Kapitel 2

Grundlagen der Elektronenbeugung

2.1 Prinzip der Elektronenbeugung

Aufgrund des Welle-Teilchen Dualismus besitzen Elektronen Welleneigenschaften, d.h. sie können wie Licht an einem Gitter gebeugt werden. Dafür müssen die Abstände in diesem Gitter in etwa der Wellenlänge der verwendeten Wellen entsprechen. Nach De Broglie besitzt jedes Teilchen eine vom Impuls p abhängige Wellenlänge λ :

$$\lambda = \frac{h}{p} \quad (2.1)$$

h ist das plancksche Wirkungsquantum. Nach der praktischeren Umrechnung der Wellenlänge in Å:

$$\lambda(\text{Å}) = \sqrt{150,4/E(eV)} \quad (2.2)$$

besitzen die Elektronen bei den typischen im Experiment verwendeten Energien von 50 eV – 200 eV eine Wellenlänge in der Größenordnung der Abstände auf der Oberfläche von typischerweise wenigen Å.

In diesem Energiebereich ist die Wechselwirkung der eindringenden Elektronen mit der Oberfläche sehr stark, die Elektronen werden schon nach wenigen Atomlagen reflektiert (siehe Abb. 2.1). Deshalb kann das Beugungsbild

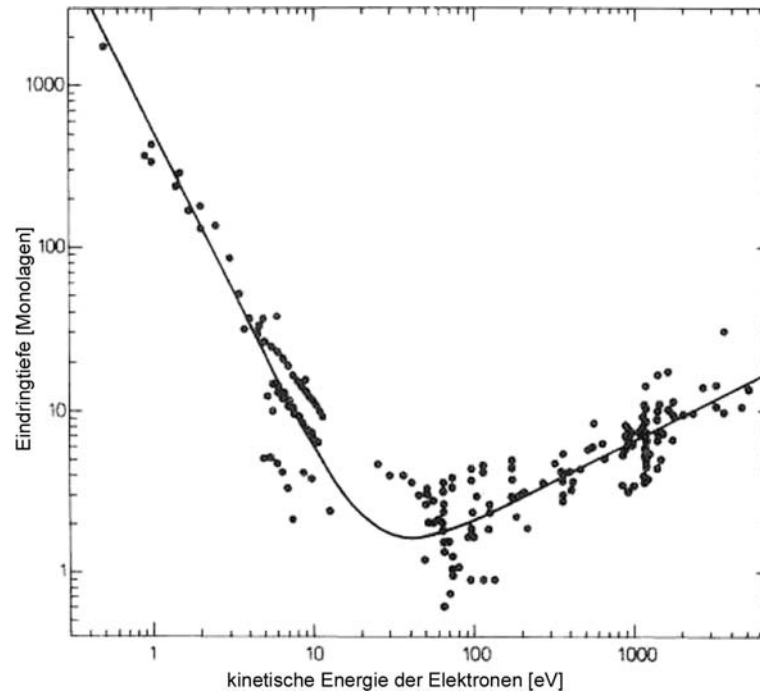


Abbildung 2.1: Dargestellt ist die inelastische freie Weglänge und damit die übliche Eindringtiefe von Elektronen in Abhängigkeit von der Energie der Elektronen. Diese ist im wesentlichen unabhängig vom chemischen Element (Zusammenstellung von Seah und Dench [73]).

nur als Reflexion betrachtet werden.

Die gebeugten Elektronen können entsprechend beschleunigt – typischerweise 5000 V Beschleunigungsspannung – auf einem Leuchtschirm dargestellt werden. Wie bei der Fraunhoferbeugung an einem Gitter mit Licht entsteht auf dem Schirm Beugungsbild. Das Beugungsmaximum nullter Ordnung wird häufig als Hauptreflex oder wegen der Reflexion der Elektronen als Spiegelreflex bezeichnet. Da ein Oberflächengitter zwei Richtungen zur Beschreibung benötigt, wird der Hauptreflex als (00)-Reflex und die Maxima erster Ordnung in den entsprechenden Richtungen mit (01), (10) usw. indiziert.

Analog zur Beugung von Licht an einem Gitter werden Elektronen kleinerer Wellenlänge, d.h. Elektronen höherer kinetischer Energie, schwächer gebeugt als längerwelliges Elektronen. Deswegen zieht sich das Beugungsbild mit einer Erhöhung der Elektronenenergie zusammen. Die energetische Bandbreite der Elektronen wird möglichst klein gehalten, d.h. die Elektronen

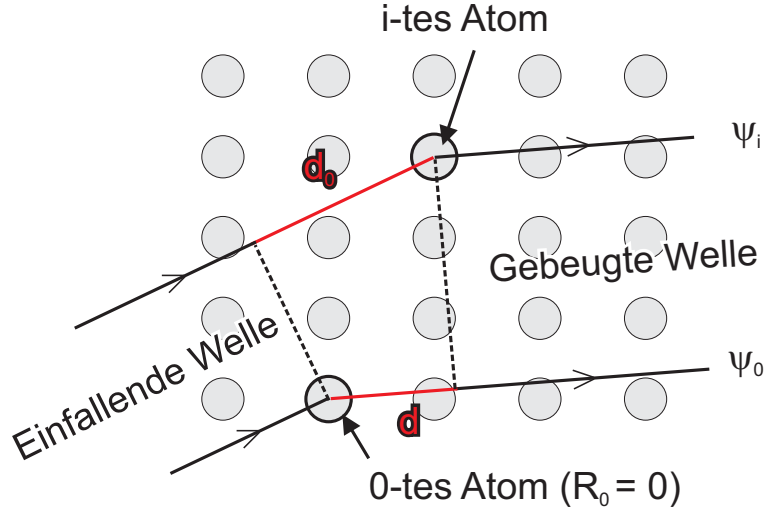


Abbildung 2.2: Dargestellt ist der Gangunterschied d_0 für einfallende bzw. d für gebeugte Welle für Beugung am 0-ten bzw. i-ten Atom im Kristallgitter. Die einlaufende Welle kann bei genügend großem Abstand von der Quelle als ebene Welle mit gerader Wellenfront betrachtet werden. Dies gilt ebenso für die gebeugte Welle. (Nach [35])

sind idealerweise monochromatisch.

Die Methode der Elektronenbeugung ist von Davisson und Germer[16] zum ersten Mal an einem Nickelkristall verwendet worden. Die heute gebräuchlichste Anwendung ist die als LEED (Low-Energy-Electron-Diffraction) Instrument mit einer Elektronenkanone und einem Leuchtschirm.

2.2 Laue Bedingung

Trifft eine Welle auf ein Gitter, so ist nach dem Huygenschen Prinzip jeder Punkt, insbesondere ein Atom, Ausgangspunkt einer neuen Welle (siehe Abb. 2.2). Die einfallende Welle wird mit dem Wellenvektor \vec{k}_{ein} und die gebeugte Welle mit \vec{k}_{aus} beschrieben. Da in der kinematischen Näherung nur elastische Einfachstreuung betrachtet wird, gilt

$$|\vec{k}_{ein}| = |\vec{k}_{aus}| = \frac{2\pi}{\lambda}$$

Für eine konstruktive Interferenz der gebeugten Welle muss der Gangunterschied $d - d_0$ zwischen den Wellen ψ_i und ψ_0 ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge λ , bzw. der Phasenunterschied ein ganzzahliges Vielfaches von 2π sein. Der Phasenunterschied φ ist gegeben durch $\varphi = 2\pi \frac{(d-d_0)}{\lambda} = (\vec{k}_{aus} - \vec{k}_{ein}) \cdot \vec{R}_i$.

Mit dem Streuvektor $\vec{K} = \vec{k}_{aus} - \vec{k}_{ein}$ lässt sich dies verallgemeinert für alle Atome im Gitter als Laue-Bedingungen beschreiben:

$$\vec{K} \cdot \vec{a}_j = 2\pi n_j \quad (2.3)$$

wobei \vec{a}_j die Einheitsvektoren des Kristallgitters sind, d.h. im einfachen Fall der Vektor zum jeweils nächsten Atom im Gitter und n_j eine ganzzahlige Zahl. Für Beugung an einer Oberfläche nimmt der Index j nur zwei statt drei Werte an.

2.3 Reziprokes Gitter

Der Streuvektor \vec{K} kann als Linearkombination dreier Vektoren \vec{a}_1^* , \vec{a}_2^* und \vec{a}_3^* beschrieben werden:

$$\vec{K} = n_1 \cdot \vec{a}_1^* + n_2 \cdot \vec{a}_2^* + n_3 \cdot \vec{a}_3^* \quad (2.4)$$

Die Vektoren \vec{a}_1^* , \vec{a}_2^* und \vec{a}_3^* bilden das reziproke Gitter im k -Raum und sind zu den Einheitsvektoren orthogonal:

$$\vec{a}_i \cdot \vec{a}_j^* = 2\pi \cdot \delta_{ij} \quad (2.5)$$

Der Vektor \vec{a}_1^* des reziproken Gitters berechnet sich aus:

$$\vec{a}_1^* = 2\pi \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \quad (2.6)$$

Die anderen Vektoren des reziproken Gitters ergeben sich durch periodisches Vertauschen der Indizes.

Der Betrag der reziproken Gittervektoren und damit die Größe der

Brillouin-Zone ergibt sich zu $|\vec{a}_j^*| = \frac{2\pi}{|\vec{a}_j|}$. Dies bedeutet, dass kleinere Abstände im k -Raum und damit im Beugungsbild größeren Abständen im Ortsraum entsprechen. Die Brillouin-Zone ist eine Wigner-Seitz-Zelle im reziproken Raum und ergibt sich aus der Verbindung der Mittelsenkrechten der Verbindungslinien vom Hauptreflex zu den Beugungsmaxima erster Ordnung.

Die Darstellung als reziprokes Gitter ist also die Darstellung des Kristallgitters im k - bzw. Impulsraum¹. Jeder Beugungsreflex entspricht einem ganzzahligen Vielfachen der Vektoren \vec{a}_1^* und \vec{a}_2^* : $\vec{g}_{(n_1, n_2)} = n_1 \vec{a}_1^* + n_2 \vec{a}_2^*$. Die ganzzahligen Zahlen n_1 und n_2 werden benutzt, um die entsprechenden Reflexe im Beugungsbild zu benennen. Die gebeugte Welle hat die Komponente parallel zur Oberfläche

$$k_{||, (n_1, n_2)} = k_{||, 0} + g_{(n_1, n_2)}$$

wobei $k_{||, 0}$ die Komponente der einfallenden Welle ist. Die Vertikalkomponente ergibt sich aus der Energieerhaltung zu

$$k_{\perp, (n_1, n_2)} = \sqrt{2 \cdot m \cdot E_{kin} / \hbar^2 - k_{||, (n_1, n_2)}^2}$$

Da der Term in der Wurzel positiv sein muss, wird nur ein Teil des Beugungsraums abgebildet. Mit steigender Energie nimmt die Größe des Ausschnitts zu.

2.4 Ewaldkugel

Die Laue-Bedingung kann mit einer so genannten Ewaldkonstruktion im k -Raum konstruiert werden. Das Beugungsbild eines LEEDs entspricht dabei einem Schnitt der Ewaldkugel mit dem Radius $\frac{2\pi}{\lambda}$ durch den k -Raum. Die Wellenvektoren von einfallender Welle und gebeugter Welle gehen dabei vom Mittelpunkt der Kugel aus und müssen zu Punkten des reziproken Gitters zeigen. Die Laue-Bedingung ist im Fall der Elektronenbeugung senkrecht zur

¹Impuls $p = \hbar \cdot k$.

²Die Richtung senkrecht zur Oberfläche wird nicht berücksichtigt.

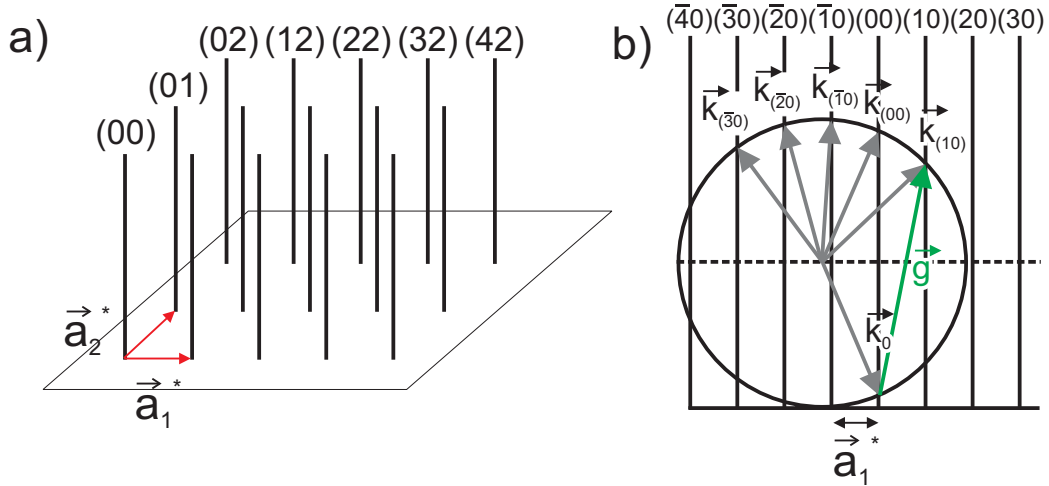


Abbildung 2.3: In a) dargestellt ist der Beugungsraum für eine Oberfläche. Das reziproke Gitter besteht aus Stangen senkrecht zur Oberfläche mit Vektoren \vec{a}_1^* und \vec{a}_2^* .

In b) dargestellt ist die Konstruktion mit der Ewaldkugel. Einfallende Welle mit Wellenvektor \vec{k}_0 und gebeugte Welle müssen auf Stangen zeigen. Der Radius der Ewaldkugel ist $\frac{2\pi}{\lambda}$. Der Verbindungsvektor zwischen \vec{k}_0 und den gebeugten Wellen ist ein Vektor \vec{g} des reziproken Gitters. Die Oberfläche ist mit einer gestrichelten Linie markiert. (nach [35])

Oberfläche nicht streng, da an keiner periodische Anordnung senkrecht zur Oberfläche gestreut wird. Die Punkte des reziproken Gitters sind zu einer Stange senkrecht zur Oberfläche aufgeweitet.

2.5 SPA-LEED

SPA-LEED steht für Spot-Profile-Analysis-Low-Energy-Electron-Diffraction. Dieses Messgerät benutzt wie ein LEED niederenergetische Elektronen, die an einer Oberfläche gebeugt werden. Der auf der Probe auftreffende Strahl wird durch Oktopole so abgelenkt, dass diese unter einem variablen Winkel auf die Oberfläche auftreffen (siehe Abb. 2.4). Die gebeugten Elektronen durchlaufen auf dem Rückweg dieselbe Anordnung und werden mit einem Channeltron, einem Elektronenvervielfacher – verstärkt. Mit der Spannung an den Ablenkplatten kann der Auftreffwinkel auf der Probe und somit $k_{||}$ variiert werden. Dies ermöglicht ein Rastern des Beugungsbilds mit einer

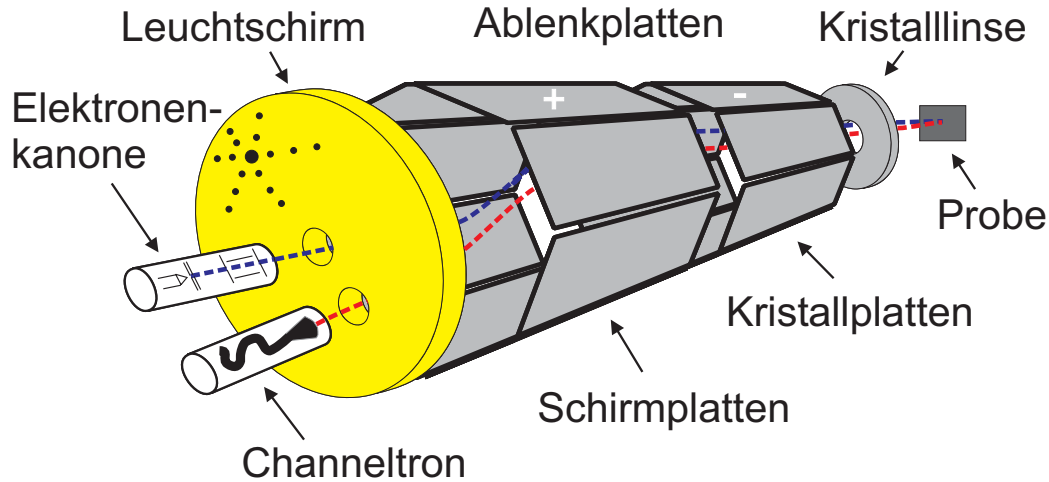


Abbildung 2.4: Schematischer Aufbau eines SPA-LEEDs nach Scheithauer et al. [71]. Die Einzelteile sind in Längsrichtung auseinander gezogen. Die Kanone sitzt mittig, der Channeltrondetektor leicht davon versetzt. Da sowohl der Strahl auf die Probe (dunkelblau gestrichelt), als auch die gebeugten Elektronen (rot gestrichelt) von den Ablenkplatten abgelenkt werden, ist der Winkel zwischen einfallender und ausgehender Welle – etwa 7° – durch den Winkel zwischen Kanone und Detektor gegeben. Die Anordnung der Ablenkplatten zu einem Oktopol dient der weitgehenden Vermeidung von Linsenfehlern im Randbereich. Um möglichst nur den Winkel der auf der Probe einfallenden Elektronen – und nicht die Position auf der Probe – zu variieren, kann die Spannung an den Ablenkplatten verändert werden. Die Spannung von gegenüberliegenden bzw. hintereinander liegenden Ablenkplatten ist dafür jeweils gegensätzlich gepolt.

festen Winkelbeziehung zwischen Ein- und Ausfallendem Strahl. Der Vorteil gegenüber dem konventionellen LEED ist hierbei, dass gezielt Ausschnitte – insbesondere Reflexe – im Beugungsraums fast beliebig vergrößert aufgenommen werden können. Aus Reflexprofilen lassen sich z.B. Schlüsse über die Rauigkeit der Oberfläche, Größenverteilung von Inseln und Domänen und Korrelationsfunktionen von Defekten ziehen [40].

Die Konstruktion des Beugungsbild entspricht hier nicht einem Schnitt mit der im Mittelpunkt des Beugungsraums sitzenden Ewaldkugel, sondern einer Rotation der Kugel um den Nullpunkt (siehe Abb. 2.5). Im Prinzip kann bei genügend Zeit für Messungen an einer Oberfläche ein komplettes Bild des Beugungsraums aufgenommen werden, indem es aus Bildern bei verschiedenen Energien zusammengesetzt wird. Da die Schnitte durch

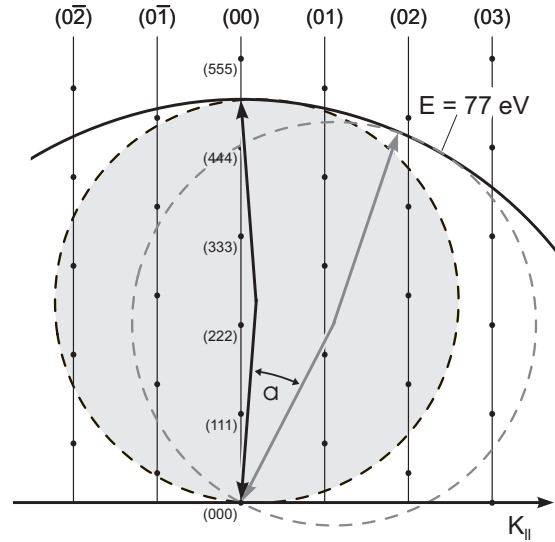


Abbildung 2.5: Für die LEED Methode ist die Abbildung ein Schnitt der im Nullpunkt des Beugungsraums zentrierten Ewaldkugel mit den Stangen der Oberfläche. Für die hier abgebildete SPA-LEED Methode ist die Abbildung eine Rotation der Ewaldkugel um den Nullpunkt, entspricht also einem Schnitt mit einer Ewaldkugel mit doppeltem effektiven Radius. Der Winkel zwischen ein- und ausfallender Welle ist durch die Anordnung von Kanone und Channeltrondetektor fest vorgegeben (Bild aus [40]).

den Beugungsraum gekrümmt sind, müssen sie je nach Energie korrigiert werden. Üblicherweise beschränkt man sich auf einen Schnitt senkrecht zur Oberfläche, der aus korrigierten 1D-Scans bei unterschiedlichen Energien zusammengesetzt ist[36]. Dieser Schnitt liefert bei stark vicinalen Oberflächen mit vielen Stufen bzw. Facetten und Terrassen wichtige Informationen über deren Ausrichtung und Rauigkeit der Oberfläche.

Kapitel 3

Grundlagen der Rastertunnelmikroskopie

3.1 Messprinzip

Das Prinzip dieses Mikroskops beruht auf dem quantenmechanischen Tunneleffekt. Aufgrund des Welle-Teilchen Dualismus können Elektronen Wellen zugeordnet werden, deren Intensität an einem gegebenen Ort einer Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons entspricht. Die beschreibende Wellenfunktion muss deshalb über den gesamten Raum integriert auf 1 normiert sein. Trifft so eine Welle auf ein Hindernis wie es das Vakuum zwischen zwei Leitern darstellt, so wird sie beim Durchgang durch dieses Hindernis gedämpft, ihre Intensität fällt exponentiell mit der Dicke der Barriere ab. Da die Intensität einer Welle hinter endlich hohen Barrieren damit sehr klein, aber immer noch größer als 0 ist, ist eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit gegeben, d.h. Elektronen können durch die Barriere tunneln.

Die Umsetzung der Theorie eines Tunnelmikroskops in ein funktionsfähiges Messinstrument [8] hat von Binnig und Rohrer eine experimentelle Pionierleistung erfordert, die nur 4 Jahre nach der Präsentation des Mikroskops mit einem Nobelpreis gewürdigt worden ist.

3.2 Die Theorie

3.2.1 Der eindimensionale Tunneleffekt

In der Quantenmechanik wird der Zustand eines Systems von einer komplexen Funktion, der Wellenfunktion Ψ , beschrieben. Die Wellenfunktion ist die Lösung der Schrödingergleichung für ein gegebenes System mit der Energie E :

$$\underbrace{\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \partial_z^2 + V_0(z)\right)}_{\text{Hamilton Operator } H} \Psi(z) = E \Psi(z) \quad (3.1)$$

\hbar ist das plancksche Wirkungsquantum $h/2\pi$, m die Masse des Elektrons und V_0 ist die energetische Höhe der Barriere. Die Wahrscheinlichkeit für einen bestimmten Zustand ergibt sich aus dem Betragsquadrat der normierten Wellenfunktion an der interessierenden Stelle. Die exponentielle Abhängigkeit des Tunnelstroms vom Abstand Spitze-Probe kann schon im eindimensionalen Fall an einer Potentialbarriere gezeigt werden[72].

Die Wellenfunktion oszilliert im klassisch erlaubten Bereich $E > V_0$ mit $k = \frac{\sqrt{2m(E-V_0)}}{\hbar}$ und fällt im klassisch verbotenen Bereich $E < V_0$ mit $q = \frac{\sqrt{2m(V_0-E)}}{\hbar}$ exponentiell ab (siehe Abb. 3.1).

Die Tunnelrate bestimmt sich aus dem Verhältnis des Betragsquadrats der Wellenfunktion nach der Barriere zu dem der Wellenfunktion vor der Barriere. Das Verhältnis ergibt sich aus den Anschlussbedingungen für die Wellenfunktion an den Übergängen von Bereichen mit unterschiedlichen Potentialen.

Für $z = 0$: $A + B = C + D$ bzw. $ik(A - B) = q(C - D)$

und für $z = s$: $F e^{iks} = C e^{qs} + D e^{-qs}$ bzw. $ik F e^{iks} = q(C e^{qs} - D e^{-qs})$

Mit den Hilfsdefinitionen $\epsilon := \frac{q}{k} - \frac{k}{q}$ und $\eta := \frac{q}{k} + \frac{k}{q}$ ergibt sich nach Lösung des Gleichungssystems der Durchlässigkeitskoeffizient:

$$T(E) = \left| \frac{F}{A} \right|^2 = \frac{1}{1 + (1 + (\epsilon^2/4)) \sinh^2(qs)} \quad (3.2)$$

Für den Grenzfall einer sehr hohen und sehr breiten Barriere ($qs \gg 1$) und

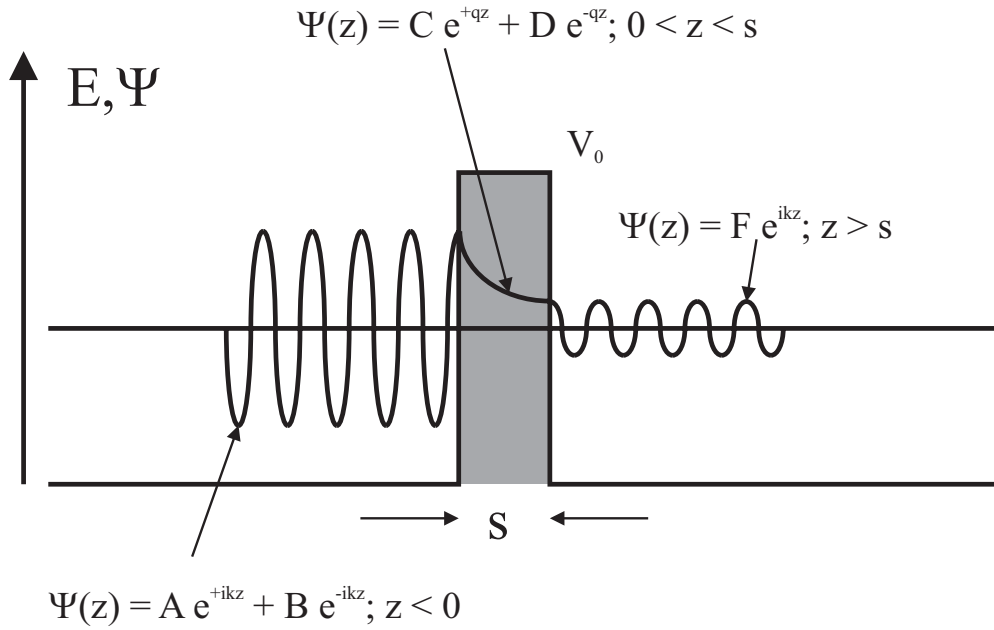


Abbildung 3.1: Eindimensionale Tunnelbarriere

Die Wellenfunktion oszilliert im klassisch erlaubten Bereich, während sie im klassisch verbotenen Bereich, in der Barriere, exponentiell abfällt. Der Term $G e^{-ikz}$ entfällt, da nur von links einlaufende Elektronen betrachtet werden.

damit $\sinh(qs) \cong (1/2)e^{qs}$ wird daraus: $T(E) \approx \frac{16q^2 k^2}{(k^2 + q^2)^2} e^{-2qs}$

Der Einfluss des Vorfaktors kann hierbei vernachlässigt werden, da die e-Funktion viel schneller wächst:

$$T(E) \cong e^{-\frac{2}{\hbar} \sqrt{2m(V_0 - E)} \cdot s} \quad (3.3)$$

Da der Strom direkt proportional zur Anzahl der tunnelnden Elektronen ist, fällt der Strom exponentiell mit dem Abstand ab.

3.2.2 Übergangsmatrix nach Bardeen

Nach dem Pauli-Prinzip ist es verboten, dass zwei Elektronen in einem System denselben Zustand einnehmen. Dies führt zu einer stark unterdrückten Wechselwirkung von Elektronen in einem Metall, da ein Impulsübertrag einen Übergang in einen anderen Zustand darstellt, der wiederum frei sein muss.

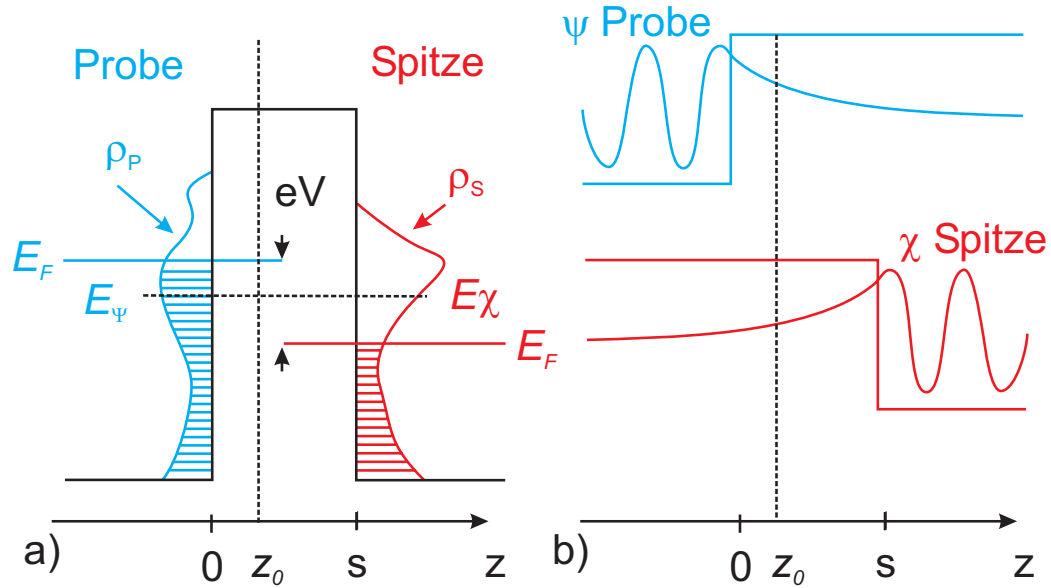


Abbildung 3.2: Teilbild a) zeigt schematisch die Zustandsdichten ρ_P der Probe und ρ_S der Spitze bei angelegter Spannung – Die Fermi-Niveaus von Probe und Spitze sind um eV gegeneinander verschoben. E_Ψ ist ein besetzter Zustand der Probe, E_χ ein unbesetzter Zustand der Spitze.

Teilbild b) zeigt die Lösung der Schrödingergleichung für die einzelnen halb-unendlichen Teilsysteme Probe und Spitze.

z_0 bezeichnet den willkürlichen Punkt der Trennfläche, über die für die Übergangsmatrix M integriert wird. (nach [12])

Im folgenden muss also eine Übergangswahrscheinlichkeit zwischen einem besetzten Zustand einer Elektrode in einen unbesetzten Zustand der anderen Elektrode betrachtet werden.

Der Ansatz von Bardeen[3] war es, nicht die Schrödingergleichung für das kombinierte System von Spitze und Probe zu lösen, sondern beide getrennt zu betrachten. Die Schrödingergleichung wird für beide System einzeln gelöst (siehe Abb. 3.2 b)) und der Übergang zwischen den Systemen mit zeitabhängiger Störungsrechnung berechnet. Bardeen hat gezeigt, dass die Übergangsmatrix $M_{\mu\nu}$ für den Übergang vom Zustand μ der Spitze in den Zustand ν der Probe vom Überlapp der zugehörigen Wellenfunktionen Ψ_μ und χ_ν an einer willkürlichen Grenze $z = z_0$ zwischen den beiden Elektroden abhängt:

$$M_{\mu\nu} = \frac{\hbar}{2m} \int_{z=z_0} \left(\psi_\mu^* \frac{\partial \chi_\nu}{\partial z} - \chi_\nu \frac{\partial \psi_\mu^*}{\partial z} \right) dS \quad (3.4)$$

Nach Fermis goldener Regel (siehe auch [72]) ergibt sich für die Wahrscheinlichkeit $W_{\mu\nu}$, dass ein Elektron aus dem Zustand ψ_μ in den Zustand χ_ν tunnelt:

$$W_{\mu\nu} = \frac{2\pi}{\hbar} |M_{\mu\nu}|^2 \delta(E_\mu - E_\nu) \quad (3.5)$$

E_μ und E_ν bezeichnen die zu den Wellenfunktionen zugehörigen Energieeigenwerte. Gl. 3.5 sagt aus, dass nur zwischen Zuständen gleicher Energie getunnelt werden kann.

3.2.3 Theorie nach Tersoff und Hamann

Tersoff und Hamann erweiterten den Ansatz der Bardeenschen Theorie um Besetzungswahrscheinlichkeiten und lokale Zustandsdichte[89].

Es können aus allen besetzten Zuständen zwischen der Fermienergie E_F und $E_f + eU_T$ in unbesetzte Zustände der anderen Elektrode getunnelt werden. Der Tunnelstrom für Elektronen der Energie $e \cdot U_T$ über dem Fermi-niveau ergibt sich aus der Summe ihrer Übergangswahrscheinlichkeiten multipliziert mit den Besetzungswahrscheinlichkeiten des Anfangszustandes sowie den Nichtbesetzungswahrscheinlichkeiten ihres Endzustandes. Die Besetzungswahrscheinlichkeit ergibt sich aus der Fermiverteilung $f(E)$:

$$f(E) = \frac{1}{e^{(E-E_f)/kT} + 1} \quad (3.6)$$

Für das Tunneln aus besetzten Zuständen der Spitze in unbesetzte Zustände der Probe kann folgende Gleichung für den Strom nach Bardeen angenommen werden:

$$I = \frac{2\pi e}{\hbar} \sum_{\mu,\nu} f(E_\mu) [1 - f(E_\nu + eV)] \cdot |M_{\mu\nu}|^2 \cdot \delta(E_\mu - E_\nu) \quad (3.7)$$

$W_{\mu\nu}$ ist die Übergangswahrscheinlichkeit aus Abschnitt 3.2.2, E_ν, E_μ sind die Energie-Eigenwerte von Probe und Spitze, E_F ist das als angeglichene

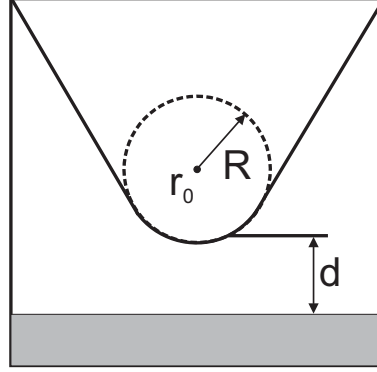


Abbildung 3.3: Geometrie nach Tersoff-Hamann [89]. Die Spitze hat eine Krümmung mit Radius R . Der Mittelpunkt des Krümmungsradius der Spitze ist \vec{r}_0 .

angenommene Fermienergie von Probe und Spitze.

Für niedrige Temperaturen ($\leq RT$) und niedrige Tunnelspannung kann der Tunnelstrom genähert werden:

$$I \simeq \frac{2\pi}{\hbar} e^2 U_T \sum_{\mu, \nu} |M_{\mu\nu}|^2 \delta(E_\nu - E_F) \delta(E_\mu - E_F) \quad (3.8)$$

Für eine Spitze mit Radius R im Abstand d zur Probe (siehe Abb. 3.3) folgt:

$$I = 32\pi^3 \hbar^{-1} e^2 U_T \Phi^2 D_T(E_F) R^2 \kappa^{-4} e^{2\kappa R} \rho(\vec{r}_0, E) \quad (3.9)$$

Dabei ist Φ die Austrittsarbeit d.h. der Differenz aus Vakuum-Niveau und Fermi-Energie, D_T Volumen-Zustandsdichte der Spitze und $\rho(\vec{r}_0, E)$ Oberflächenzustandsdichte (Local Density Of States, LDOS) der Probe am Punkt \vec{r}_0 und $\kappa = \hbar^{-1} \sqrt{2m_e \Phi}$ Abfall-Konstante der Wellenfunktion im Vakuum. Die Zustandsdichte $\rho(\vec{r}_0, E)$ entspricht dabei $\sum_\nu |\chi_\nu(\vec{r}_0)|^2 \delta(E_\nu - E)$.

3.3 Die Praxis

3.3.1 Constant-Current-Mode

Für einen elektrischen Nettostrom muss ein Potentialunterschied zwischen Probe und Spitze existieren – typische angelegte Spannungen für Halbleiter-

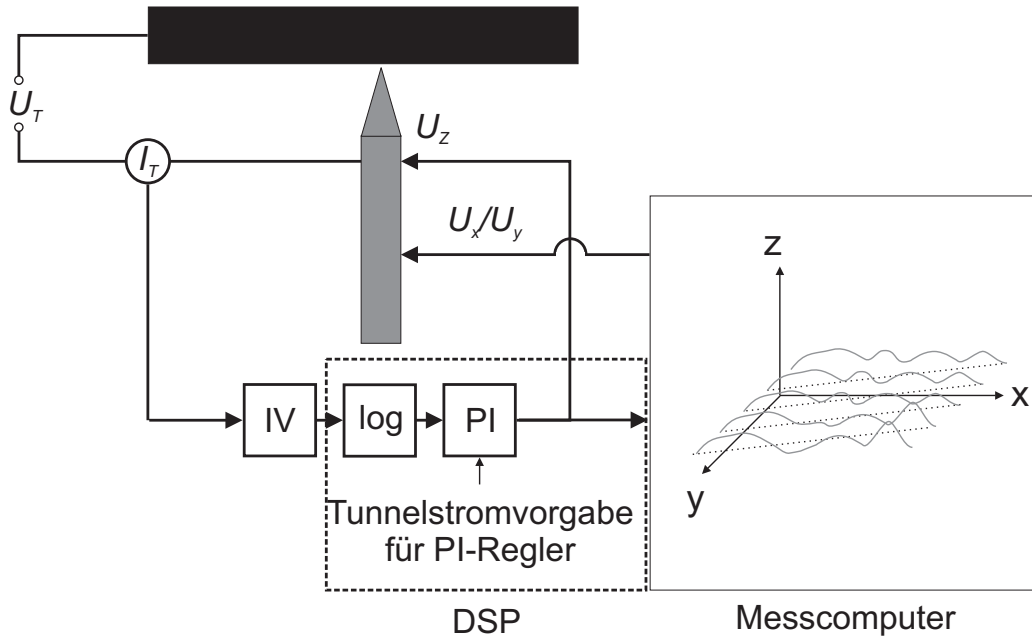


Abbildung 3.4: Prinzip des Rastertunnelmikroskops im Constant-Current-Mode. Die Spitze ist an die Probe angenähert worden. Bei angelegter Spannung U_T fließt ein Strom I_T über die Spitze. Dieser Strom wird mit einem IV-Konverter in eine Spannung umgewandelt. Danach wird die resultierende Spannung logarithmiert, um eine stabile Regelung mit dem nachfolgenden PI-Regler zu erhalten, der auf einen konstanten Stromwert regelt. Der Regelwert wird als Z-Spannung U_Z für den Abstand zwischen Spitze und Probe und als Messwert für einen Bildpunkt im STM-Bild genommen. Das Aufnahmengerät – ein Messcomputer – gibt für die Rasterung der Oberfläche Spannungen U_X und U_Y für die Bewegung in x- und y-Richtung aus – eine Sägezahnspannung für die x- und eine Spannungsrampe für die y-Richtung. Die Bewegung der Spitze zwischen den Bildzeilen ist mit einer gestrichelten Linie angedeutet.

proben sind ± 2 V. Bei negativer Spannung fließen Elektronen aus besetzten Zuständen der Probe in unbesetzte Zustände der Spitze, bei positiver Spannung fließen Elektronen aus der Spitze in unbesetzte Zustände der Probe (siehe Abb. 3.5). Dieser Richtwert kann sich für unterschiedliche adsorbatinduzierte Rekonstruktionen massiv – meist in Richtung geringerer Spannung – ändern. Der Grund dafür ist eine Änderung der Austrittsarbeit für Elektronen, während das Ferminiveau gleich bleibt (siehe auch Abb. 3.5). Für Metalle muss typischerweise die angelegte Spannung wegen der stark erhöhten lokalen Zustandsdichte am Fermi-niveau auf Bruchteile von einem Volt

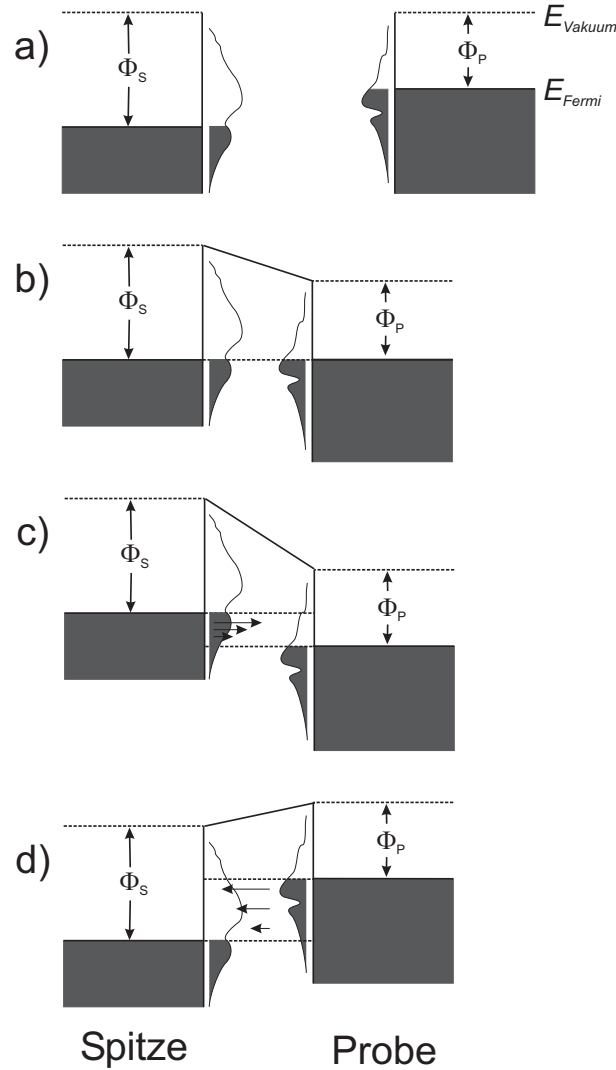


Abbildung 3.5: Für zwei Metalle mit unterschiedlicher Austrittsarbeit ist gezeigt: a) Spitze und Probe sind weit entfernt – Das Vakuumniveau ist gleich, aber die Fermi-Niveaus sind nicht angeglichen. Die Fermi-Niveaus unterscheiden sich vom Vakuumniveau durch die jeweilige Austrittsarbeit Φ_P bzw. Φ_S .

b) Spitze und Probe sind angenähert, die Fermi-Niveaus haben sich angeglichen. Es hat sich ein Kontaktpotential gebildet, das an dem Gefälle der Oberseite der Barriere in der Mitte zwischen den Leitern zu erkennen ist.

c) Positive Tunnelspannung: Elektronen tunneln aus besetzten Zuständen der Spitze in unbesetzte Zustände der Probe.

d) Negative Tunnelspannung: Elektronen tunneln aus besetzten Zuständen der Probe in unbesetzte Zustände der Spitze.

E_{Vakuum} ist das Vakuumniveau, E_{Fermi} ist das Fermi-Niveau, Φ_S und Φ_P Austrittsarbeiten der Spitze respektive der Probe (nach [11]).

reduziert werden.

Im Standardfall wird das STM im so genannten Constant-Current-Mode (CCM) betrieben. Der Abstand der Tunnelspitze von der Probenoberfläche wird dabei so geregelt, dass der Tunnelstrom, in dieser Arbeit typischerweise etwa 0,4 nA, konstant bleibt.

Wie in Abb. 3.4 zu sehen, wird eine Spitze im geringen Abstand von weniger als einem Nanometer Zeile für Zeile rasternd über eine leitende Oberfläche geführt. Der über die Spitze fließende Tunnelstrom wird verstärkt und in eine Spannung umgewandelt. Wegen der exponentiellen Abstandsabhängigkeit (Gl. 3.3) des Stroms vom Abstand beider Leiter wird diese Spannung logarithmiert. Abweichungen dieser Spannung vom Stellwert – der Stellwert wird von der Spannung abgezogen – sind nun proportional zum Abstand. Dies ermöglicht eine stabile Regelung mit einem PI-Regler. Der Proportionalanteil dient zur Ausregelung hochfrequenter Störungen wie einzelnen Atomen, der Integralanteil – die Abweichungen werden über einen kleinen Zeitraum summiert – dient zur Ausregelung niederfrequenter Störungen wie es z.B. die Neigung der makroskopischen Oberfläche gegenüber der Spitze darstellt. Die Spitze wird mit einer Piezokeramik bewegt, deren Auslenkung innerhalb gewisser Grenzen proportional zur angelegten Spannung sind. Deswegen kann die Ausgabe des Regelkreises direkt mit einer angemessenen Verstärkung auf die Piezospaltung in Z-Richtung gegeben werden. Die Position der Spitze (siehe Abb. 3.4) ist über die an der Piezokeramik angelegte Z-Spannung bekannt und stellt die Information eines Bildpunktes dar. Für die Darstellung wird für jede Bildzeile ein Linienabzug gemacht. Nach Konvention werden hohe Stellen hell, niedrige Stellen dunkler dargestellt.

Bildinterpretation

Aus der Änderung des Kontrasts bei Änderung der angelegten Spannung, insbesondere bei Wechsel des Vorzeichens, können Schlussfolgerungen über die aufgenommenen Oberflächenstrukturen gemacht werden. Wenn ein Bildmerkmal bei allen Spannungen erhalten bleibt, sollte es sich um eine Atomposition bzw. Vakanz handeln. Wenn ein Merkmal spannungsabhängig ist, kann

davon ausgegangen werden, dass es sich um einen Bindungszustand handelt. Insbesondere bei Abbildung der besetzten Zuständen sollten Bindungen, wie z.B. die Dimere auf der Si(100)-Oberfläche, zu sehen sein, während sich bei Abbildung unbesetzter Zustände im Idealfall die einzelnen Atome zeigen. Da es im CCM nur in Ausnahmefällen – wie beispielsweise der Bleiinduzierten $\gamma - (\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion auf der Silizium(111)-Oberfläche [24] – einen chemischen Kontrast gibt, müssen andere Methoden, wie die Tunnelmikroskopbasierte Spektroskopie¹, benutzt werden.

Eine Doppelspitze – der Strom fließt über weiter auseinander liegenden Stellen der Spitze – führt zu Überlagerung von Bildmerkmalen und ist ein unerwünschter Effekt, da es die Auflösung verringert. Dies kann besonders gut an Stufenkanten beobachtet werden, wo auf der unteren Terrasse das Bild der oberen Terrasse oder Stufenstruktur wie ein milchiges Geisterbild erscheint, auch wenn die Auflösung auf größeren ebenen Bereichen weit weg von den Stufen tadellos sein kann.

3.4 Bildbearbeitung und Bildauswertung

Um STM-Bilder sinnvoll auswerten zu können, empfiehlt es sich, solche zu nehmen, die einen geringen Piezo-Creep (siehe Abschnitt 4.2.1) aufweisen, da sie z.B. am Ende einer Serie von Bildern an derselben Probenstelle aufgenommen worden sind. Ein Hilfsmittel für die Entzerrung der Bilder sind die Korrekturfunktionen von Programmen wie WSxM[95], die aus dem Versatz von Gitterpunkten eine affine Abbildung erzeugen, die Längen und Winkel im Bild korrigiert. Sind die Abstände in einer bestimmten Richtung gegeben – z.B. ein Abstand von 7 Gitterkonstanten von Loch zu Loch der (7×7) -Rekonstruktion (siehe Abschnitt 1.4) – so können noch unbekannte Abstände in einer neuen Rekonstruktion bestimmt bzw. die Bewegung der Spitze kalibriert werden (siehe Abschnitt 4.2.4).

Um die Bandbreite der Höheninformation von 16 Bit visuell darstellen zu können, ist im Messbetrieb ein Linienabzug für jede Scanzeile notwen-

¹Scanning Tunneling Spectroscopy (STS, hier nicht verwendet)

dig, die einen Ausgleich für die Neigung der Probe gegenüber der Spitze schafft. Um sinnvoll Höhenunterschiede u.Ä. zu ermitteln muss ein Ebenenabzug vom Bild gemacht werden. Existieren im Bild Stufen, so bieten sowohl das Messprogramm [101] als auch WSxM die Möglichkeit, den Ebenenabzug über Teilbereiche – Terrassen – im Bild zu ermitteln.

Da das STM einen Tubescanner besitzt, wird der Abstand zur Oberfläche bei gleicher Z-Spannung durch Verbiegung zu den Rändern hin größer, was mit einem Parabelabzug ausgeglichen werden kann.

Bedingt durch die thermische Drift kann sich der Abstand der Spitze zur Probe im Verlauf der Messung ändern. Dies kann durch ein Polynom $P(y)$ ausgeglichen werden, dessen Wert in der entsprechenden Zeile von allen Spalten abgezogen wird.

STM-Bilder können mit Beugungsbildern (siehe Abschnitt 2) verglichen werden, indem sie Fouriertransformiert werden. Diese Transformation übersetzt die Bilder aus dem Ortsraum in den Frequenzraum. Über Positionsvergleich von Reflexen in beiden Bildern kann ermittelt werden, welche Bereiche auf der Oberfläche ein Beugungsbild erzeugen. Es können sogar Reflexe im Fourierbild herausgeschnitten und das Bild zurücktransformiert werden, um diese Bereiche gezielt zu bestimmen. Ebenso lässt sich im Fourierbild über die Beziehung $k = 2\pi/a$ eine Länge a kalibrieren. Weiterhin lässt sich anhand der Fouriertransformation auf einen Blick anhand der Form der Reflexe erkennen, wie gut ein Bild entzerrt worden ist. Da keine dynamischen Effekte wie Vielfachstreuung berücksichtigt werden, wird hier der so genannte Strukturfaktor unterschlagen, so dass die Intensitäten nicht direkt übertragbar sind.

Störende Peaks oder elektronisches Rauschen über eine Zeile im STM-Bild können mit leichtem Qualitätsverlust über Interpolation mit benachbarten Reihen bzw. Spalten ersetzt werden.

Kapitel 4

Experimentelles

4.1 Vakuumapparatur

Die Ultrahochvakuum-Apparatur besteht aus drei Edelstahlkammern – der Schleuse, der Hauptkammer für Präparation der Probe sowie deren Charakterisierung mit einem SPA-LEED von Leybold und der STM-Kammer mit einem Omicron Micro STM. Alle in der Arbeit vorgestellten Messungen sind bei Raumtemperatur gemacht worden. Zum Transfer zwischen den Kammern werden magnetisch geführte Transferstäbe benutzt. Für die speziellen Ansprüche der STM-Kammer ist dort ein Wobblestick mit einer Greifzange integriert, um die Probe in das STM bzw. Probengarage transferieren zu können.

4.1.1 Notwendigkeit eines guten Vakuums

Ein gängiges Beispiel für die Notwendigkeit eines sehr guten Vakuums ist das eines Hochvakuums von 10^{-6} mbar , in dem die Dichte des Restgases noch so groß ist, dass die Oberfläche einer Probe innerhalb einer Sekunde von einer geschlossenen Schicht von Restgasteilchen bedeckt ist. Angenommen wird dabei, dass der Haftkoeffizient 1 ist, d.h. jedes auf der Oberfläche auftreffende Teilchen adsorbiert. Da selbst geringste Verunreinigungen die Ordnung der Oberfläche und die Art der mit der Präparation erzeugten Rekonstruktionen beeinflussen, ist dies unbedingt zu vermeiden. Dies ist während der eigentlich

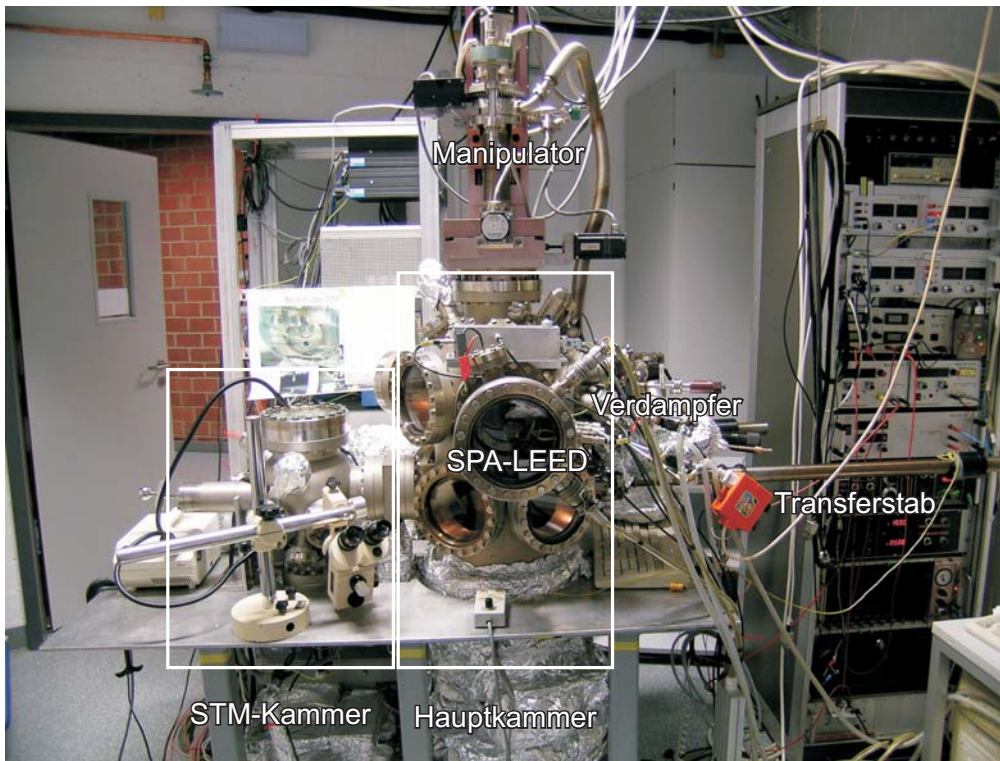


Abbildung 4.1: Außenansicht der Apparatur. Zu sehen sind die kleine STM-Kammer links und die Hauptkammer mit SPA-LEED und Verdampfern zur Präparation rechts. Die Schleuse befindet sich verdeckt auf der andere Seite der Hauptkammer. Der Transfer der Proben über die untere Ebene wird mit Transferstäben bewerkstelligt. Der Hauptmanipulator dient zum Transport zwischen Transport- und Messebene und zur Positionierung für Präparation und SPA-LEED-Messungen.

Präparation um so wichtiger, da die Oberfläche heiß und damit reaktiver wird. Ein weiterer Grund ist der, dass Adsorbate die Qualität der Spitze des Rastertunnelmikroskops negativ beeinflussen können.

Die Anzahl der auf einer Oberfläche einfallenden Teilchen fällt linear mit dem Umgebungsdruck ab. Also können Messungen bei den üblichen Drücken von 10^{-10} mbar für mehrere Stunden auf einer sauberen Oberfläche durchgeführt werden. Da die gewünschten Adsorbate sowohl die Anzahl der freien Bindungen auf der Oberfläche reduzieren, als auch einen direkten Kontakt unerwünschter Adsorbate mit dem Substrat verhindern, kann sich dieser Zeit-

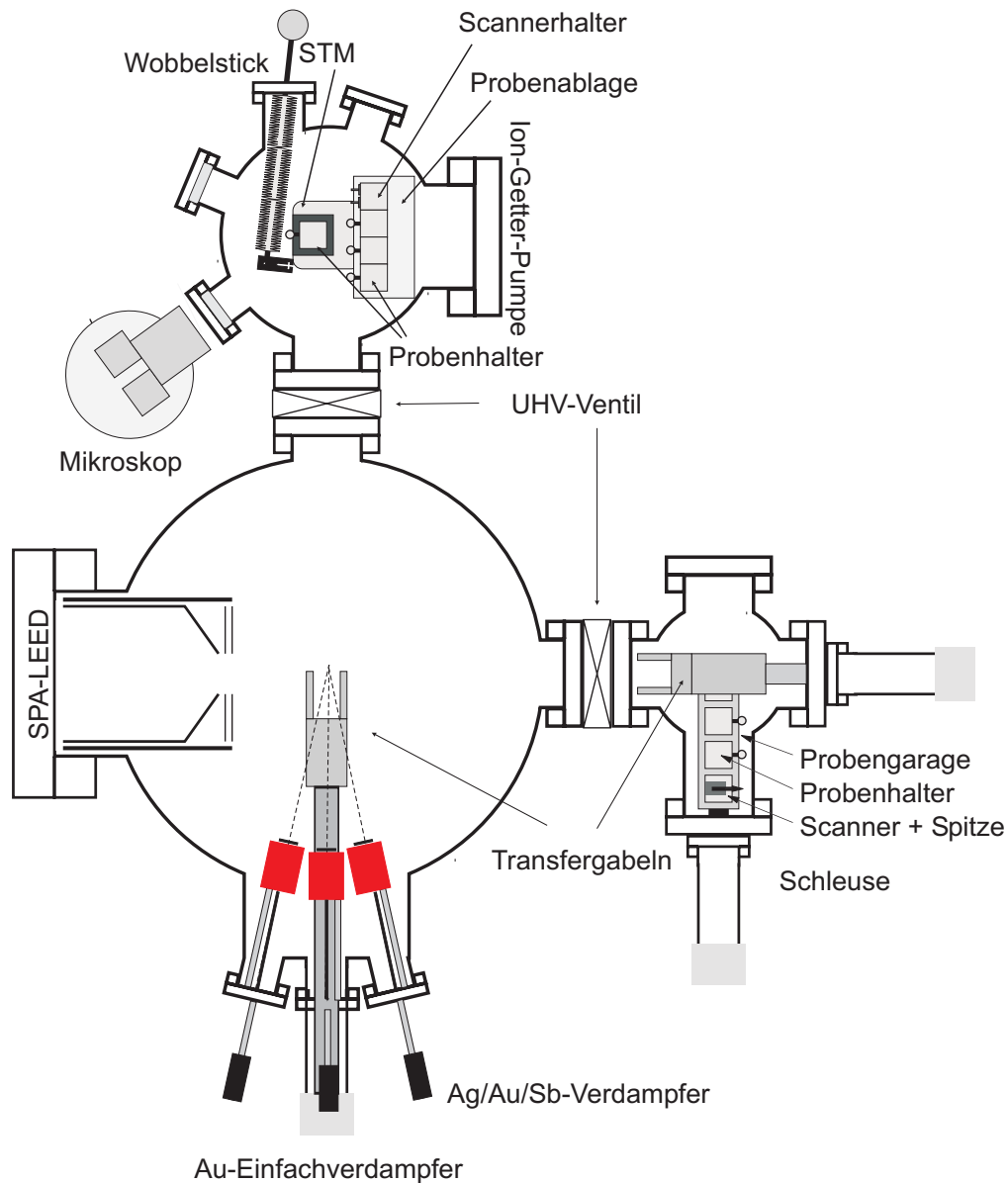


Abbildung 4.2: Die Vakuumapparatur besteht aus Schleusen-, Haupt- und STM-Kammer, die durch Ventile getrennt sind. Evakuiert wird die Apparatur durch die Schleuse. Ein Bypass erlaubt die separate Evakuierung der STM-Kammer (nicht eingezeichnet). Der Transfer der Probenhalter aus der Schleuse in die Haupt- bzw. STM-Kammer wird mit den Transferringabeln vollzogen. In der Hauptkammer werden die Proben mit Verdampfern präpariert und mit dem SPA-LEED charakterisiert. Ein Sichtflansch am SPA-LEED erlaubt eine schnelle Justage des Elektronenstrahls mit einem im SPA-LEED integrierten Leuchtschirm. In der STM-Kammer dient der Wobblestick zum Transfer der Probenhalter zwischen Transferringabel der Hauptkammer, Probenablage und STM. Ein Scannerhalter ermöglicht das Lagern von neuen Spitzen inklusive Scannerhalter im UHV. Ein Lichtmikroskop dient zur Überwachung der Grobannäherung der Spitze an die Probe.

raum erheblich verlängern. Dies gilt natürlich nur, wenn der Haftkoeffizient auf der rekonstruierten Oberfläche geringer als auf dem reinen Substrat ist. Deswegen bietet es sich an, eine präparierte Oberfläche erst dann wieder durch Heizen auf Temperaturen von über 1100°C zu reinigen, wenn eine neue Präparation der Oberfläche ansteht.

4.1.2 Erzeugung von Ultrahochvakuum

STM- und Hauptkammer werden über die Schleuse mit Hilfe einer Turbomolekularpumpe evakuiert. Damit die STM-Kammer nicht über die Hauptkammer abgepumpt werden muss, ist zwischen Schleuse und STM-Kammer ein Bypass angebracht, so dass die folgende Prozedur für beide Kammern getrennt durchgeführt werden kann.

Damit die Turbomolekularpumpe arbeiten kann, muss sie gegen einen geringen Vordruck von weniger als 10^{-2} mbar betrieben werden. Ein Vordruck im Bereich von 10^{-3} mbar kann mit einer ölgedichteten Drehschieberpumpe erzeugt werden. Eine Zeolithfalle fängt die zwangsläufig entstehenden Öldämpfe ab, damit die Apparatur nicht mit Öl kontaminiert wird. Der geringe Vordruck wird durch den Einsatz der Turbomolekularpumpe noch einmal um bis zu fünf Größenordnungen reduziert.

Um nach einem Belüften der Apparatur wieder Ultrahochvakuum mit Drücken im Bereich von 10^{-10} mbar zu erreichen, muss die Apparatur bis in den Hochvakuumbereich evakuiert und bei Temperaturen bis zu 150°C für 1-2 Tage ausgeheizt werden. Damit lassen sich die Adsorbate von den Kammerwänden – unter anderem der an Luft typische Wasserfilm – in angemessener Zeit lösen. Danach kann die Schleuse mit einem Ventil abgetrennt werden, damit der laufende Betrieb mit einer Ionengetterpumpe, unterstützt von Titansublimatoren, aufgenommen werden kann. Auf den Betrieb der Turbomolekularpumpe wird zur Vermeidung von Vibrationen verzichtet. Die Qualität des Vakuums kann mit einer Bayard-Alpert Druckmessröhre [64] bzw. einem Massenspektrometer bestimmt werden.

4.1.3 Schleuse

Die Schleuse enthält eine Probengarage mit Stromanschlüssen für drei Proben, eine Glühwendel zum Ausglühen der Spitzen für das Rastertunnelmikroskop, sowie zwei Heizstäbe. Bevor Gegenstände in die Hauptkammer transferiert werden, werden diese für mehrere Stunden geheizt. Bei Proben geschieht dies wie auch bei der Präparation durch direkten Stromdurchgang. Für die STM-Scanner wird die Kammer mit den Heizstäben geheizt, um eine zu starke Erhitzung der Piezo-Keramik des Tubescanners (siehe unten) auf über 130°C zu vermeiden.

4.2 Das Rastertunnelmikroskop

Das Rastertunnelmikroskop der Apparatur ist ein Micro STM der Firma Omicron, das im Rahmen der Diplomarbeit von Rüdiger Hild[37] mit Federaufhängung und einer Wirbelstromdämpfung erweitert wurde. Dabei wird das eigentliche STM mit Spitze und Probe vom Rest der Apparatur durch eine Federaufhängung entkoppelt d.h. die Federn haben eine geringe Eigenfrequenz, die die hohen Eigenfrequenzen des starren STM-Stacks nicht anregen können. An den Federn hängt zusätzlich ein massiver Kupferblock, durch den ein von starken Seltenerdmagneten – 1,2 Tesla – erzeugtes Magnetfeld geht. Bei Bewegung des Kupferblocks durch dieses Magnetfeld wird in dem Leiter ein Strom erzeugt, für dessen Aufbau eine Energie notwendig ist, die aus der Bewegungsenergie des Kupferblocks gezogen wird – die Schwingung wird gedämpft.

Das STM besitzt einen transferierbaren Tubescanner aus einer zylindrischen Piezo-Keramik mit Kontakten für $\pm X, \pm Y, Z, Z_0$, Tunnelstrom und Tunnelstromabschirmung. Die Bewegung der Spitze in X- bzw. Y-Richtung geschieht über ungleichnamige Spannungen auf gegenüberliegenden Elektroden auf der Mantelfläche, während eine Bewegung in Z-Richtung durch eine Potentialdifferenz zwischen Innenseite des Zylinders und den äußeren Elektroden erzeugt wird.

Die elektrischen Durchführungen für diese Kontakte sind getrennt von denen

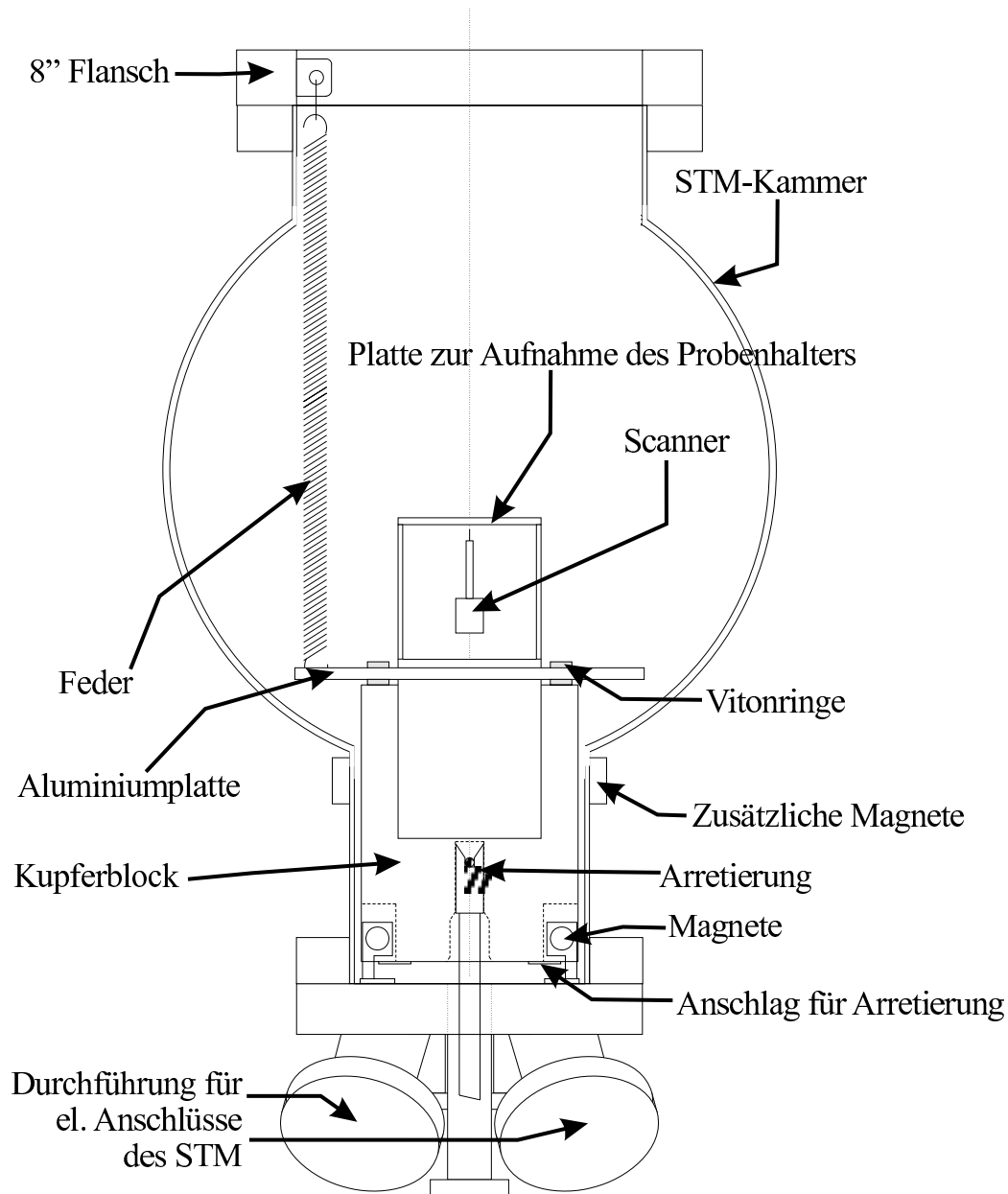


Abbildung 4.3: Das STM ist in der Kammer mit drei Federn an dem oberen 8 " Flansch befestigt. Die daran angebrachte Aluminiumplatte trägt den STM-Stack mit Scanner und hält einen massiven Kupferblock von 6kg Gewicht, der zusammen mit starken (1,2 T) Seltenerd magneten mit Feldlinien für die Wirbelstromdämpfung sorgt. Die Durchführungen für die elektrischen Anschlüsse des STM sind getrennt für Steuerung und Messung angelegt.

Ein Arretierungsstift sorgt im unbenutzten Zustand für eine Entlastung der Federn.

(Aus [37])

der Piezo-Grobsteuerung angelegt, um die Gefahr eines elektrischen Übersprechens zu minimieren.

Die Steuerung des STM und Messwertaufnahme geschieht mit Hilfe der Gxsm Software[101]¹, die dazu eine DSP-Karte – in der Apparatur "Quantum" eine PC31 – verwendet (siehe auch Schema in Abb. 3.4). Die Daten werden mit Hilfe des netcdf Datenformats abgespeichert, das eine flexible Datenstruktur und Erweiterung der abzuspeichernden Daten ermöglicht.

Da das Mikroskop keine Kühl- oder Heizfunktion besitzt, finden alle Messungen bei Raumtemperatur statt.

4.2.1 Regelung und Bildverzerrung

Eine Übersteuerung der Regelung der Spitze führt zu einer künstlichen Feinstruktur des Bildes gerade an Stufenkanten, an der die Spitze über das Ende des Hindernisses hinausschießt und mit einer wellenartigen Modulation abfällt. Eine zu geringe Regelung fällt unter Umständen im separat auf einem Oszilloskop darstellbaren Z-Signal auf. Dabei scheinen alle größeren Höhenunterschiede eine der maximalen Regelung entsprechenden linear abfallende Flanke zu besitzen. Um eine gute Regelung zu erreichen wird üblicherweise der Proportional- bzw. der Integralanteil der PI-Regelung soweit hoch getrieben, bis die Regelung jeweils übersteuert und der Stellparameter daraufhin auf die Hälfte runtergesetzt wird.

Eine sehr häufige und kaum zu vermeidende Bildverzerrung wird durch thermische Drift bzw. Piezo-Creep verursacht. Dies sind zwei sehr unterschiedliche Effekte, die eine Bildverzerrung entlang der langsamen Scanrichtung – bei den in der Arbeit vorgestellten Bildern entlang der senkrechten y-Richtung – bewirken. Im Fall der thermischen Drift bewegen sich Probe und Spitze wegen der unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Komponenten gegeneinander, wobei sich im Verlauf der Zeit die Richtung der Drift ändern kann. Die thermisch induzierte Drift wurde im Experiment üblicherweise vermieden, indem eine halbe Stunde nach Einsetzen der Probe in das Mikroskop mit den eigentlichen Messungen gewartet

¹URL:<http://gxsm.sf.net>

worden ist.

Der Piezo-Creep entsteht durch die Verzögerung, mit der die Piezokeramiken auf große Spannungsänderungen reagieren. Die relative Änderung zu der instantan erreichten Längenänderung a_1 innerhalb der Zeit t lässt sich mit der Gleichung $\Delta l/l_0 = a_1 + a_2 \cdot \ln(t)$ beschreiben [27]. Dieser Effekt kann je nach Größe der Änderung bis zu 30 % betragen. Um diesen Effekt so gering wie möglich zu halten wurde eine Neupositionierung der Spitze mit einem Offset in x- bzw. y-Richtung weitgehend vermieden bzw. Bilder im Up/Down Modus aufgenommen, in dem das nächste Bild jeweils vom Ende des vorhergehenden Bilds aus aufgenommen wird.

4.2.2 Spitzenpräparation

Die Spitze für das STM wird elektrochemisch mit einer 2 molaren Natronlauge aus einem 0,25mm dicken Wolframdraht geätzt. Dazu wird der Wolframdraht als Anode in die Lauge getaucht, so dass beim elektrochemischen Ätzen der Bereich direkt an der Oberfläche durch Konvektion immer dünner wird, bis das untere Teilstück abfällt. Das obere Teilstück wird vom haltenden Drahtrest abgekniffen und in einer Glühwendel aus Molybdän in der Schleuse bei Drücken kleiner 10^{-7} mbar hell glühend getempert. Die Spitze wird dadurch kristallin und spröde. Auf passendes Maß gestutzt wird die Spitze in den transferierbaren Scanner eingesetzt, welcher für mehr als 12 Stunden im Vakuum in der Schleuse ausgeheizt wird.

4.2.3 In situ Änderung der Spitze

Da an der Tunnelspitze sehr hohe Feldstärken im Bereich von 10^{10} V/m auftreten, können Atome sowohl von der Spitze als auch von der Probe polarisiert und im Bereich höchster Feldstärke abgelöst werden. Es findet bei hohen angelegten Spannungen im Bereich von $8 \text{ V} - 10 \text{ V}$ ein reger Wechsel der Ionen von der Spitze zur Probe und umgekehrt statt. Dabei hängt es von der angelegten Spannung ab, wie groß der bei der positiven Elektrode gebildete Überschuss – Insel auf der Probe bzw. Kegel auf der Spitze – ist [78]. Die naive Vorstellung, dass Elektronen der Kathode positive Ionen auf der Anode

erzeugen, die sich auf der Kathode ansammeln, scheint also genau nicht zu zutreffen. Im Gradienten des starken elektrischen Feldes der Spitze werden Atome auf der Oberfläche polarisiert und von der Spitze angezogen (ebenso [78]).

Eine weitere Möglichkeit für eine in situ Änderung ist eine kontrollierte Kollision der Spitze mit der Oberfläche. Die Spitze verliert dabei eine große Anzahl von Atomen, nimmt aber auch Material von der Oberfläche auf, welches im Idealfall eine neue Spitze formt. Die Atomorbitale von Atomen aus dem Substrat können auch günstiger für den Kontrast als die Orbitale der Wolframatome sein. Beiden Methoden ist gemein, dass ein Erfolg nicht garantiert ist und im Fall der Kollision die Lebenserwartung der Spitze verkürzt wird. Wenn aber eine Doppelspitze vorliegt kann u.U. nur eine Kollision das Auflösungsvermögen verbessern.

Ist die Oberfläche mit Adsorbaten präpariert, ist wegen der üblichen geringeren Bindung der metallischen Adsorbate die Gefahr der Spitzenänderung vergrößert. Deshalb sollte man mit verschiedenen Strom- und Spannungswerten experimentieren, um Werte zu finden, bei denen die Auflösung über längere Zeit stabil und gut bleibt. Ebenso kann die Einstellung der Regelungsparameter kritisch für eine stabile Auflösung sein.

4.2.4 Kalibrierung des Tubescanners

Die piezoelektrischen Konstanten des Tubescanners wurden anhand der markanten Löcher – engl. "cornerholes" – der (7×7) -Rekonstruktion (siehe Abschnitt 1.4) für die x- und y-Richtung und anhand von Einfachstufen der Si(111)-Oberfläche für die Z-Richtung kalibriert.

Die Umrechnungsfaktoren ergaben sich wie folgt:

$$C_X = 440 \frac{\text{\AA}}{\text{V}}, C_Y = 440 \frac{\text{\AA}}{\text{V}}, C_Z = 74 \frac{\text{\AA}}{\text{V}}$$

Diese Kalibrierung muss für jeden Scanner einzeln gemacht werden, ändert sich aber innerhalb einer hinreichend langen Zeit von Monaten im Allgemeinen nur minimal.

In der schnellen X-Richtung der Scannerbewegung ist die Kalibrierung sehr

gut und in einem Bild stabil. Allerdings schleicht sich in der langsamen Y-Richtung ein Piezo-Creep ein, der am besten durch die Aufnahme zweier Bilder desselben Abschnittes mit gegensätzlicher Y-Scanrichtung korrigieren lässt. Da bei einem korrekt funktionierenden Tubescanner die Umrechnungsfaktoren für beide Richtungen gleich sind, wird die X-Richtung kalibriert und derselbe Faktor für die Y-Richtung verwendet.

4.3 Probenhalter

Das Design der Probenhalter ist ein Kompromiss, um an derselben Probe im UHV sowohl Präparation der Probe und Charakterisierung mit SPA-LEED als auch lokale Untersuchungen mit einem Rastertunnelmikroskop durchzuführen. Deswegen sind die auf dem Probenhalter befestigten Proben mit den Abmessungen von $5\text{mm} \times 15\text{mm} \times 0,6\text{mm}$ für eine Beugungsmethode relativ klein, für Rastertunnelmikroskopie aber deutlich größer als normal. Die verwendeten Probenhalter benutzen als Basis die Probenhalterplatten von Omicron, die für den Wobblestick des STMs mit einer Öse versehen sind. Erweitert wird die Platte mit zwei Molybdänbacken, die zur Kontaktierung der Probe mit den jeweiligen Stromzuführung und zur Halterung im Manipulator der Hauptkammer dienen. Die beiden Seiten des Probenhalters sind zur elektrischen Isolierung mit Keramikröhren bzw. einer – für eine gute thermische Leitfähigkeit – Saphirplatte voneinander getrennt. Dies erzwingt den Stromdurchgang durch die Probe und erlaubt deren Heizung durch ihren Widerstand – auch engl. "Joule-heating" genannt. Zur Verschraubung dienen speziell angefertigte Tantalschrauben. Zur Fixierung der Probe werden 0,5 mm dicke Drähte bzw. dünne Molybdänbleche verwendet.

4.4 Präparation einer reinen Siliziumoberfläche

Die Proben werden mit einem Kristallschneider auf dem Wafer angeritzt und heraus gebrochen. Die Größe einer Probe beträgt etwa $15 \times 5 \text{ mm}^2$. Die Ori-

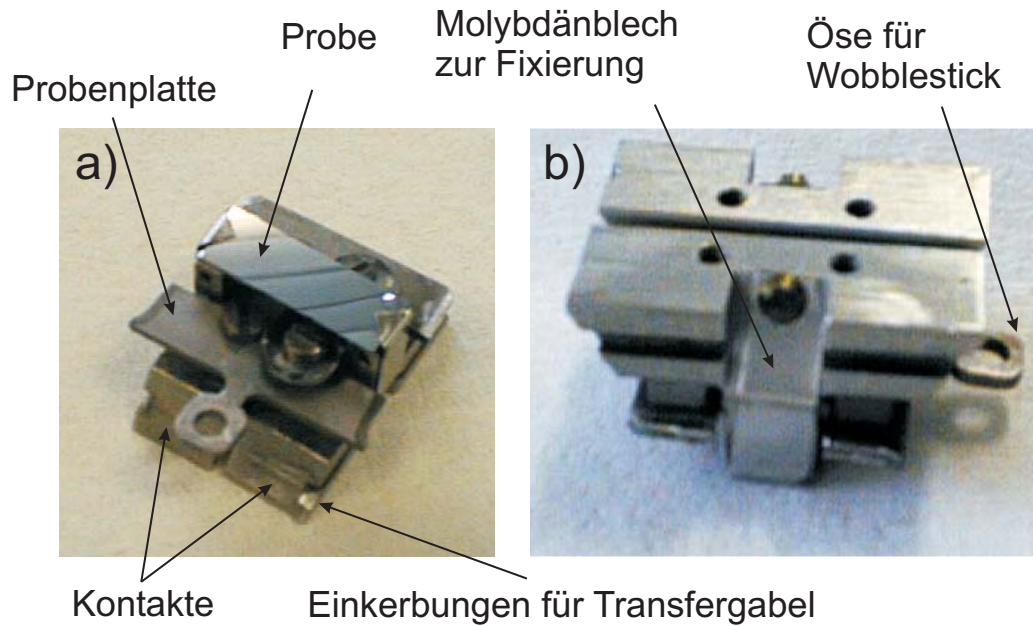


Abbildung 4.4: Probenhalter (Details siehe Text Abschnitt 4.3) – a) zeigt die Vorderseite des Probenhalters mit der Probe, b) zeigt die Rückseite des Probenhalters mit den Backen für den elektrischen Kontakt.

entierung von Proben aus demselben Wafer wird immer gleich gewählt und mit dem Kristallschneider durch ein Kreuz in der unteren rechten Ecke markiert. Damit lässt sich später ggf. die Richtung der Stufen für alle Messungen auf der Probe rekonstruieren. Vorhandene Verunreinigungen bzw. Stäube und Splitter, die beim Brechen entstehen können werden durch vorsichtiges Wischen auf beiden Seiten der Probe entfernt. Nach Befestigung wird die Probe auf der Oberseite nochmals mit Ethanol gereinigt, da die Montage zu Kratzern an den Klemmen und leichtem Kristallstaub auf der Probe führen kann. In der Schleuse wird die Probe in dem Druckbereich von 10^{-6} mbar durch direkten Stromdurchgang bei etwa 600°C mehr als 12 Stunden geheizt. Damit werden sowohl Probe als auch Probenhalter ausgegast, damit sich der Druck und damit die Verunreinigung der Probe während der Präparation durch Erhitzung des Halters nicht kritisch erhöht. Vor dem ersten Aufdampfen wird die Probe in der STM-Kammer durch direkten Stromdurchgang auf Temperaturen von 1100°C – 1200°C erhitzt, um das Oxid von der Oberfläche zu entfernen. Die Probe wird zwischen 840°C und 825°C langsamer

abgekühlt, um eine möglichst gut geordnete (7×7) -Rekonstruktion der Oberfläche ohne viele ungeordnete Domänenwände zu erreichen.

4.5 Temperaturmessung

Eine Temperaturkurve und Kalibrierung der Probenheizung für verschiedene Heizströme der einzelnen Proben wurde mit einem Impac-Pyrometer erstellt. Die Emissivitätskurve wurde der Examensarbeit von B. Gerfen[23] entnommen, die mit dem Pyrometer eine iterative Annäherung an die tatsächliche Temperatur erlaubt. Um eine schnellere Messung zu erlauben, wurde bei konstanter Emissivität $\epsilon = 0,50$ gemessen und anhand einer Tabelle den richtigen Werten zugeordnet. Diese Zuordnung ist im linearen Anstiegsbereich der Emissivität zwischen 300 °C und 650 °C recht gut mit einem Fehler von ± 10 °C.

Eine vermeidbare Fehlerquelle ist ein zu hoher Abstand von der Probe, so dass die Probe nicht mehr im Fokus des Pyrometers ist und größer als die Probe wird. Weiterhin ist ein Temperaturgradient über die Probe möglich, der gerade bei niedrig dotierten Proben mit hohem Widerstand gut 25 °C und mehr entlang der Probe ausmachen kann. Auch ist darauf zu achten, dass die Kalibrierung auf einem bestimmten Vakuumfenstertyp basiert, da sich die Absorptionsspektren einzelner Fenstertypen unterscheiden.

4.6 Verdampferquellen

Um gezielt Adsorbate auf der Oberfläche aufzubringen werden so genannte Verdampfer verwendet. Das Adsorbatmaterial wird erhitzt, bis es verdampft bzw. sublimiert um als Teilchenstrahl auf die Probenoberfläche zu treffen.

Die Verdampferquellen lassen sich generell in zwei Typen aufteilen. Bei der einen Sorte werden die Tiegel mit dem Verdampfermaterial über einen Heizdraht von außen geheizt. Bei der zweiten Sorte, den Elektronenstrahlverdampfern, wird eine Glühwendel verwendet, aus denen bei einem hohen Heizstrom thermisch aktiviert Elektronen austreten und mit einer Hochspan-

nung auf den Tiegel beschleunigt werden. Beide Verdampfertypen benötigen mehrere Minuten, um den Tiegel zu thermalisieren und damit eine stabile Aufdampftrate zu liefern. Beide Verdampferarten werden üblicherweise mit einer Blende versehen, um ein unnötiges Bedampfen der Kammer zu vermeiden und in Kombination mit einem Shutter definierte Aufdampfzeiten zu gewährleisten.

Weiterhin wird dieser Aufbau mit einem Kühlkörper aus Kupfer ummantelt, der über eine Wasserkapillare gekühlt wird. Dies vermeidet das Aufheizen der Wände und damit die Kontamination der Kammer – insbesondere der Probe – durch sich lösende Adsorbate. Zur Bedeckungskalibrierung wird ein separater Schwingquarz verwendet, der neben der Blende ein separates Loch abdeckt. Sollte aus Platzgründen, wie beim Dreifachverdampferaufbau, die Verwendung eines Quarzes nicht möglich sein, kann der Verdampfer in einem separaten Aufbau getestet werden und über die $\frac{1}{r^2}$ Abhängigkeit² die Bedeckung auf den Abstand Probe-Verdampfer in der Kammer umgerechnet werden (siehe auch Abschnitt 4.7).

4.6.1 Details zu verwendeten Elektronenstrahlverdampfern

Bei diesem Typ von Verdampfern wird ein 0,15 mm dünnes Wolframfilament durch direkten Stromdurchgang aufgeheizt, bis thermisch aktiviert Elektronen aus dem Filament austreten. Der Tiegel mit dem zu verdampfenden Material ist gegenüber diesem Filament auf positive Hochspannung, typischerweise 1000 V, gelegt, so dass die austretenden Elektronen auf den Tiegel zu beschleunigt werden. Die Heizleistung ist das Produkt aus angelegter Hochspannung und dem Strom ankommender Elektronen. Mit diesem Design lassen sich hohe Heizleistungen bis 120 W und mehr erreichen, wie sie mit einer reinen Glühwendel nicht möglich wären. Ein Nachteil ist, dass die dünne Glühwendel kristallin und somit recht empfindlich gegenüber Erschütterungen wird.

Da die Elektronen mit hohen Geschwindigkeiten auf den Tiegel und auf das

²Kugelgeometrie

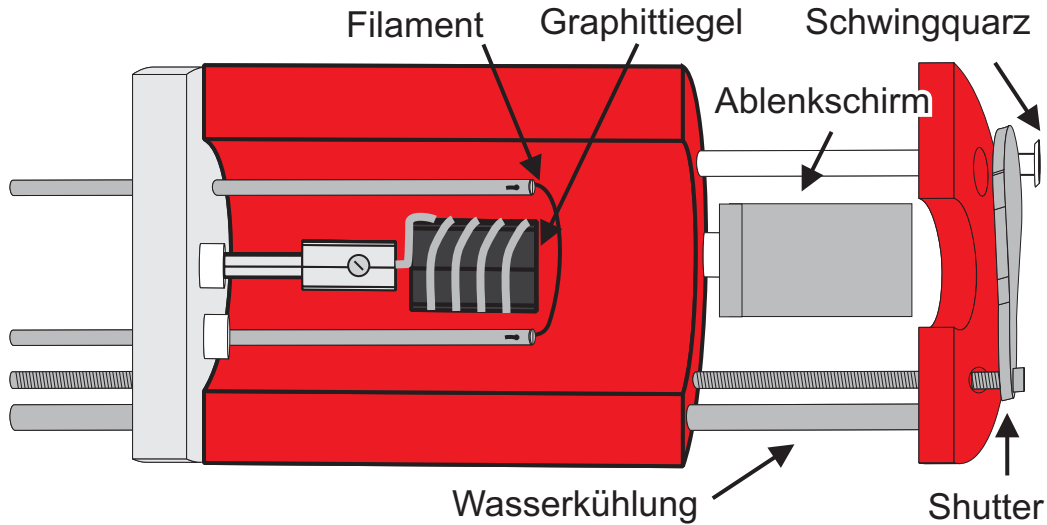


Abbildung 4.5: Aufschnitt eines Elektronenstrahlverdampfers. Der Kupferblock ist über die Wasserkühlung mit dem Flansch verbunden (nicht dargestellt). Der Shutter wird über ein Gestänge mit einer Drehdurchführung bedient (ebenfalls nicht dargestellt).

zu verdampfende Material treffen, werden neben neutralen Teilchen auch Ionen erzeugt. Um zu verhindern, dass diese die Oberfläche der Probe treffen und die Oberfläche schädigen, wird dieselbe Hochspannung wie für den Tiegel üblicherweise auf eine Platte parallel zum Teilchenstrahl gelegt, die die Ionen zur Seite ablenkt.

Als Tiegel wurde für die Goldverdampfer Molybdän bzw. hochfestes HOPG – hochorientiertes pyrolitisches Graphit – verwendet. Auf Molybdän wurde im Verlauf der Experimente verzichtet, da das Gold den Tiegel auch außen benetzt und somit im Vergleich zu anderen Tiegelmaterialien wesentlich mehr Gold nutzlos auf die Innenseite des Kühlkörpers aufgedampft wird.

4.7 Kalibrierung der Goldbedeckung

Die Goldbedeckung wurde anhand des Übergangs von der Koexistenz der (5×2) -Rekonstruktion mit der (7×7) -Rekonstruktion der reinen Si(111)-Oberfläche zur Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion bei 600°C Präparationstemperatur mit dem SPA-LEED bestimmt. Dieser Phasenübergang

liegt bei 0,45 ML Au (siehe Phasendiagramm Abb. 5.1, Seite 45). Für die Verdampfer wurden Aufdampfzeiten von der Größenordnung 0,1 ML pro Minute benutzt.

Die Kontrolle der Aufdampfzeit der Verdampfer findet mit einem Schwingquarz – technisch ein handelsüblicher 10 MHz-Schwingquarz mit AT-Schnitt – statt. Dabei wird ausgenutzt, dass die Eigenschwingung eines Oszillators mit dem Gewicht des Adsorbats abnimmt. Dabei ergibt sich experimentell ein linearer Zusammenhang zwischen der Frequenzänderung und der Menge des aufgedampften Materials. Eine große Fehlerquelle resultiert aus der Temperaturerhöhung des Schwingquarzes, d.h. nur in einem schmalen Temperaturbereich von 0°C bis 50°C ist die Quarzeigenfrequenz stabil. Wird die Temperatur überschritten, so erhöht sich die Eigenfrequenz des Quarzes. Eine Regulierung der Schwingquarztemperatur ist an den in der Apparatur verwendeten Verdampfern nicht möglich. Deswegen wurden alle Verdampfer vor Einbau an einem Pumpstand mit einem Maxtek TM-350 Schwingquarzmonitor kalibriert, der speziell produzierte AT-geschnittene Quarze von 6 MHz Eigenfrequenz benutzt. Da sich die Temperatur des Schwingquarzes und damit die Frequenz des Quarzes während des Verdampferbetriebs trotz Wasserkühlung erhöht hat, wurden die Eigenfrequenzen des Quarzes vor und nach dem Verdampferbetrieb jeweils im abgekühlten Zustand bestimmt. Aus der Differenz der Frequenzen wurde jeweils die Aufdampfzeit für verschiedene Verdampferleistungen ermittelt. Die Details der auch als engl. "microbalance" bekannten Messmethode sind in der Arbeit von Sauerbrey[68] nachzulesen.

Kapitel 5

Domänenwandordnung

5.1 Au-Adsorption im Submonolagenbereich

Die Umwandlung der reinen (7×7) -rekonstruierten Siliziumoberfläche in (5×2) -rekonstruierte Domänen benötigt eine Mindesttemperatur von etwa 300°C [25] bei Goldbedeckung der Oberfläche bis etwa 0,43 ML. Diese Rekonstruktion wächst stark anisotrop und bricht die Symmetrie der Oberfläche durch die Bildung von drei Rotationsdomänen.

Der typische Fall der Rekonstruktion der Si(111)-Oberfläche im Submonolagenbereich ist der einer, um 30° gegenüber dem Substrat gedrehten, $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion. Ein spezielles Merkmal der goldinduzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion ist die Bildung von goldreichen Domänenwänden, die die einzelnen Domänen voneinander trennen. Die Dichte der Domänenwände nimmt mit steigender Goldbedeckung auf den $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen zu, bis bei weiterer Bedeckung eine metastabile $(2\sqrt{21} \times 2\sqrt{21})$ [44],[66] entsteht. Bei noch höherer Bedeckung entsteht in Abhängigkeit von der Temperatur eine ungeordnete $\beta-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ bzw. deren kristalline (6×6) -Phase[59].

Eine nur bei STM-Untersuchungen[74] gefundene $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})$ konnte bisher mit Elektronenbeugung nicht bestätigt werden. Sie entsteht bei ähnlicher Bedeckung wie die $(2\sqrt{21} \times 2\sqrt{21})$ -Rekonstruktion, da sie benachbart zu dieser auftritt.

Dies deutet darauf hin, dass sich das Phasendiagramm für $\alpha-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -, $\beta-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -, $(2\sqrt{21} \times 2\sqrt{21})$ -, $(3\sqrt{3} \times 3\sqrt{3})$ und (6×6) -Phase zusammenfassen lässt als eine $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion mit unterschiedlicher Dichte und Ordnung von Domänenwänden.

Bisher konnte in keiner Veröffentlichung ein Ergebnis für goldinduzierte Rekonstruktionen auf der Si(111)-Oberfläche präsentiert werden, in der es für die Ausbildung einer Rekonstruktion einen Unterschied macht, ob man bei einer erhöhten Temperatur Gold anbietet oder ob bei niedrigerer Temperatur aufgedampft und danach bei der gewünschten Präparationstemperatur die Probe getempert wird.

Im folgenden wird dargelegt, in welcher Form die (5×2) -Rekonstruktion Spiegeldomänen und damit dichter gepackte Domänenwände besitzt. Da-

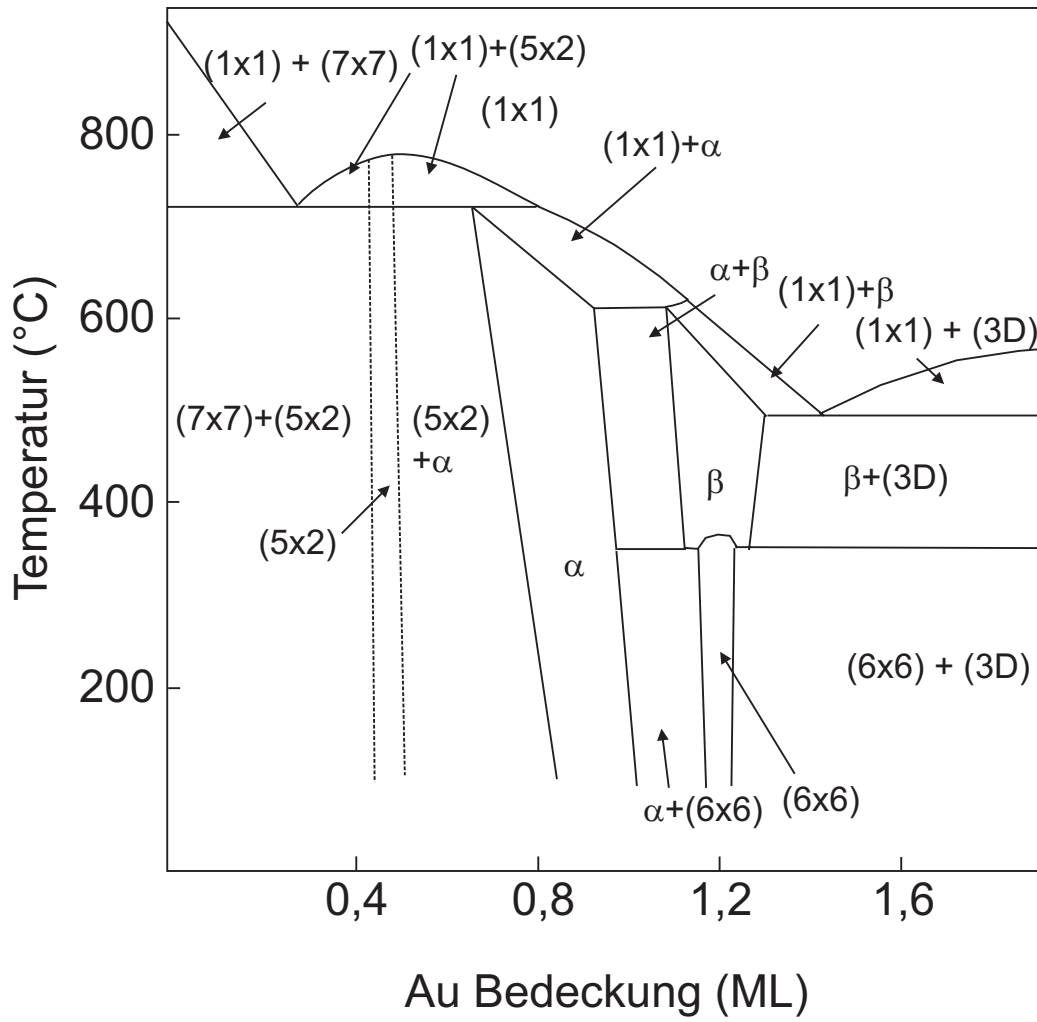


Abbildung 5.1: Phasendiagramm nach Grozea et al.[25]. α und β bezeichnen zwei verschiedene, goldinduzierte Rekonstruktionen mit $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Symmetrie. 3D steht für das Wachstum von 3-dimensionalen Inseln.

zu werden Beugungsbilder von einer (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase, d.h. bei niedriger Goldbedeckung gezeigt und mit einer Modulation bei höherer Gesamtbedeckung an Gold auf der Oberfläche verglichen und analysiert (Abschnitt 5.2.3). Im weiteren werden STM-Aufnahmen der Oberfläche gezeigt und es wird auf die wesentlichen Details wie Phasenverschiebungen und Spiegeldomänen eingegangen. In Abschnitt 5.2.8, Abschnitt 5.2.10 und Abschnitt 5.2.11 wird die Rolle der Adatome betrachtet, die im Beugungsbild nicht sichtbar sind. In Abschnitt 5.2.12 wird zuerst simuliert, welche Verteilung die Phasenverschiebungen der (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase besitzen. Danach wird darauf eingegangen, welche Ordnungen die Phasenverschiebungen der (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase besitzen. Das Kapitel wird mit einer knappen Einführung zur $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion abgeschlossen, um das Modell mit Spiegeldomänen zu erläutern.

5.2 (5×2) -Rekonstruktion

Die (5×2) -Rekonstruktion tritt bei Temperaturen ab 320 °C ¹ unter Angebot von Gold auf der Si(111)-Oberfläche auf. Dabei wird im Gegensatz zu etlichen anderen Adsorbaten auf dieser Oberfläche zuerst keine $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion gebildet, sondern die Symmetrie der Oberfläche gebrochen, indem längliche Domänen mit drei verschiedenen Rotationsrichtungen gebildet werden. Diese Rekonstruktion wurde zuerst 1969 von Bishop und Rivière[9] im Rahmen der Untersuchung zur Golddiffusion aus dem Volumen an die Oberfläche gefunden. Es sollte darauf hingewiesen werden, dass die (5×2) -Rekonstruktion in der Literatur häufig als (5×1) -Rekonstruktion bezeichnet wird. Dies lässt sich problemlos mit einer fehlenden Kohärenz der (5×2) -Rekonstruktion in 2-fach Richtung erklären, die die Natur dieser Rekonstruktion im Beugungsbild verschleiert[53] und zu der häufigen Fehlinterpretation als (5×1) -Rekonstruktion führt. Ist das Vakuum schlechter als 10^{-8} mbar [15], verschwinden die Streifen der (5×2) -Rekonstruktion im Beugungsbild gänzlich wie im Artikel von Bishop und Rivière[9]. Eine starke Adsorption von Restgasen auf der (5×2) -Rekonstruktion ist von Hasegawa et al.[33] beobachtet worden, die zu elektronischem Rauschen in Rastertunnelmikroskopieaufnahmen führt.

5.2.1 Beugungsbild der (5×2) -Rekonstruktion

Wie in Abb. 5.2 zu sehen, führt die gut geordnete 5-fach Periodizität der Rekonstruktion zu scharfen Reflexen in $1/5$ Brillouin-Zone (BZ) Abständen für alle drei möglichen Ausrichtungen der (5×2) -rekonstruierten Domänen. Jeweils parallel dazu verlaufen Streifen entlang der Mitte der Brillouin-Zone. Dies lässt sich mit einer mangelnden Ordnung entlang der 2-fach Richtung erklären. Wie schon von Lipson und Singer 1974[53] ohne Kenntnis von lokalen Aufnahmen postuliert und gezeigt, reicht ein rein zufälliger Versatz benachbarter (5×2) -rekonstruierter Streifen um eine Gitterkonstante aus, um diesen Effekt zu erzeugen (siehe Abschnitt 5.2.12).

¹variiert in der Literatur zwischen 320 °C [75] und 400 °C [87]

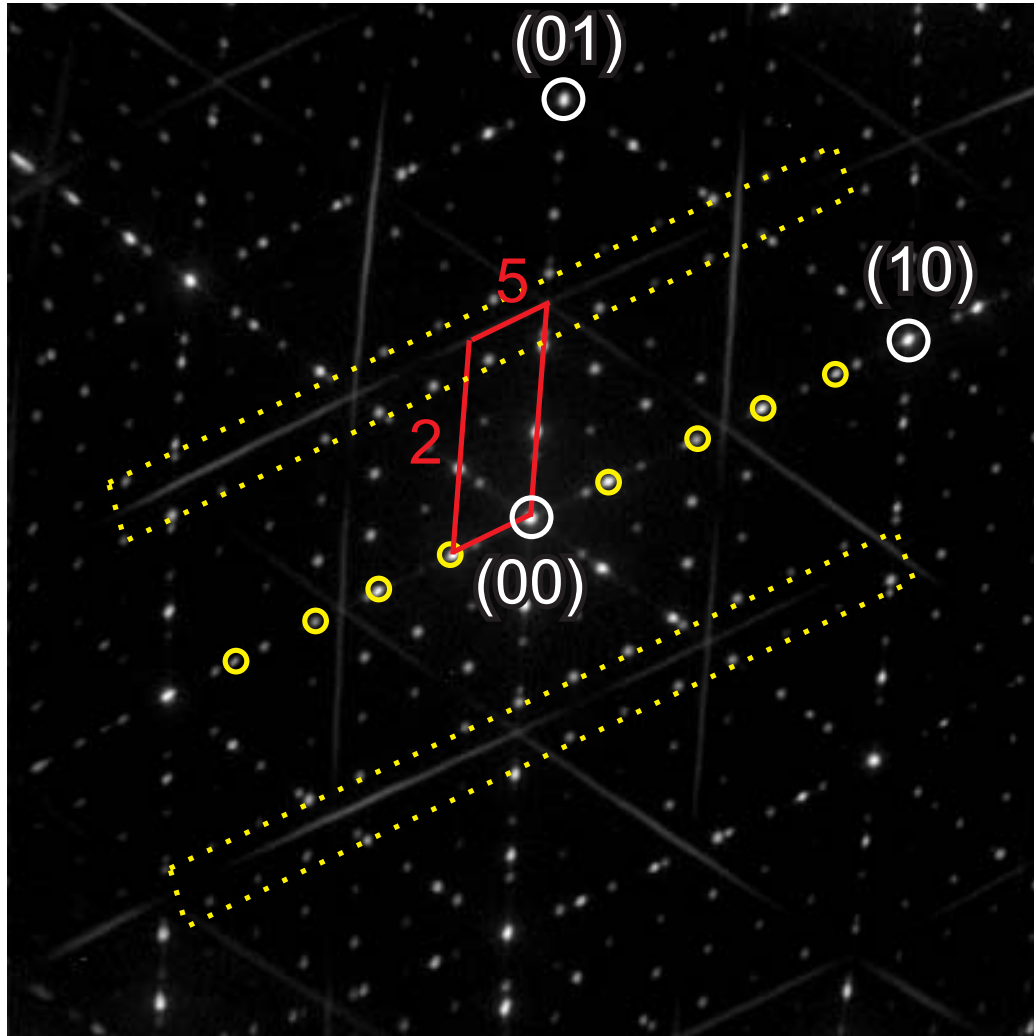


Abbildung 5.2: Beugungsbild einer Si(111)-Oberfläche, die mit 0,3 ML Gold bei 540 °C präpariert worden ist. Bei Raumtemperatur zeigt sich die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase der reinen Oberfläche. Alle drei möglichen Rotationsdomänen der (5×2) sind vertreten. Zu einer Richtung gehören die scharfen (5×1) -Reflexe (mit gelben Kreisen markiert) und die Streifen auf halber Brillouin-Zone (mit gestrichelten Linien markiert). Die Streifen besitzen eine Zweiteilung entlang der 5-fach Richtung. Eine (5×2) -Einheitszelle ist rot eingezeichnet und die entsprechenden Abstände im Realraum in Gitterkonstanten angegeben. Zwei Beugungsmaxima erster Ordnung sind mit (01) bzw. (10) markiert. (128 eV)

Die deutlich zu sehende Aufteilung der Streifen in jeweils zwei Streifenteile ist noch nicht verstanden. Die Länge im Realraum entspricht dabei etwa zwei bzw. drei Gitterkonstanten in 5-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion. Denkbar ist hierbei, dass die Streuer auf der Oberfläche, z.B. die Adatome, durch ihre endliche Größe einen Ring mit einem Beugungsminimum erzeugen. Dabei wäre allerdings eher zu erwarten, dass zumindest eine Aufteilung in drei Streifenteile vorliegt, da so ein Ring um den Hauptreflex den Streifen zweimal durchschneidet und nur im Extremfall genau den Durchmesser einer Brillouin-Zone hat. Alternativ könnte die Aufteilung in Zusammenhang mit den vorhandenen Spiegeldomänen (Abschnitt 5.2.6, Seite 61) gebracht werden. Dann wäre zu erwarten, dass die Aufteilung mit Zunahme der Spiegeldomänen zunimmt. Dies wäre speziell für goldinduzierte Spiegeldomänen einer (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase (siehe Abschnitt 5.2.9, Seite 74) der Fall, so dass die Aufteilung in diesem Fall deutlicher sein müsste.

5.2.2 Modulation des Beugungsbilds im Übergangsbereich zur $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$

Wie in Abb. 5.3 zu sehen, entsteht im Übergangsbereich zur Au- $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ eine Modulation der Streifen im Beugungsbild, wobei die "Wellenlänge" genau $1/5$ BZ, also 5 Gitterkonstanten im Realraum entspricht. Es hat sich eine Ordnung der (5×2) -rekonstruierten Bereiche in 2-fach Richtung herausgebildet, die im Beugungsbild reflektiert wird. Diese Modulation wurde 1991 von Takahashi et al.[84] als Hochtemperaturphase bei 810 °C erwähnt, aber nicht weiter untersucht oder verstanden. Es lassen sich Oberflächen präparieren, deren Beugungsbilder diese Modulation, aber keine $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Reflexe zeigen. Dies lässt sich darauf zurückführen, dass die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche auf dieser Oberfläche so klein sind, dass die zugehörigen $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Reflexe auslaufen und im Untergrund verschwinden. Dies bedeutet zugleich, dass diese Modulation nicht das Ergebnis eines Randbereichs der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche sein kann. Eine reine (5×2) -Phase der Oberfläche während der Adsorption mit Gold ist mit LEEM-Messungen belegt[83], bei der sich die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase mit zunehmenden

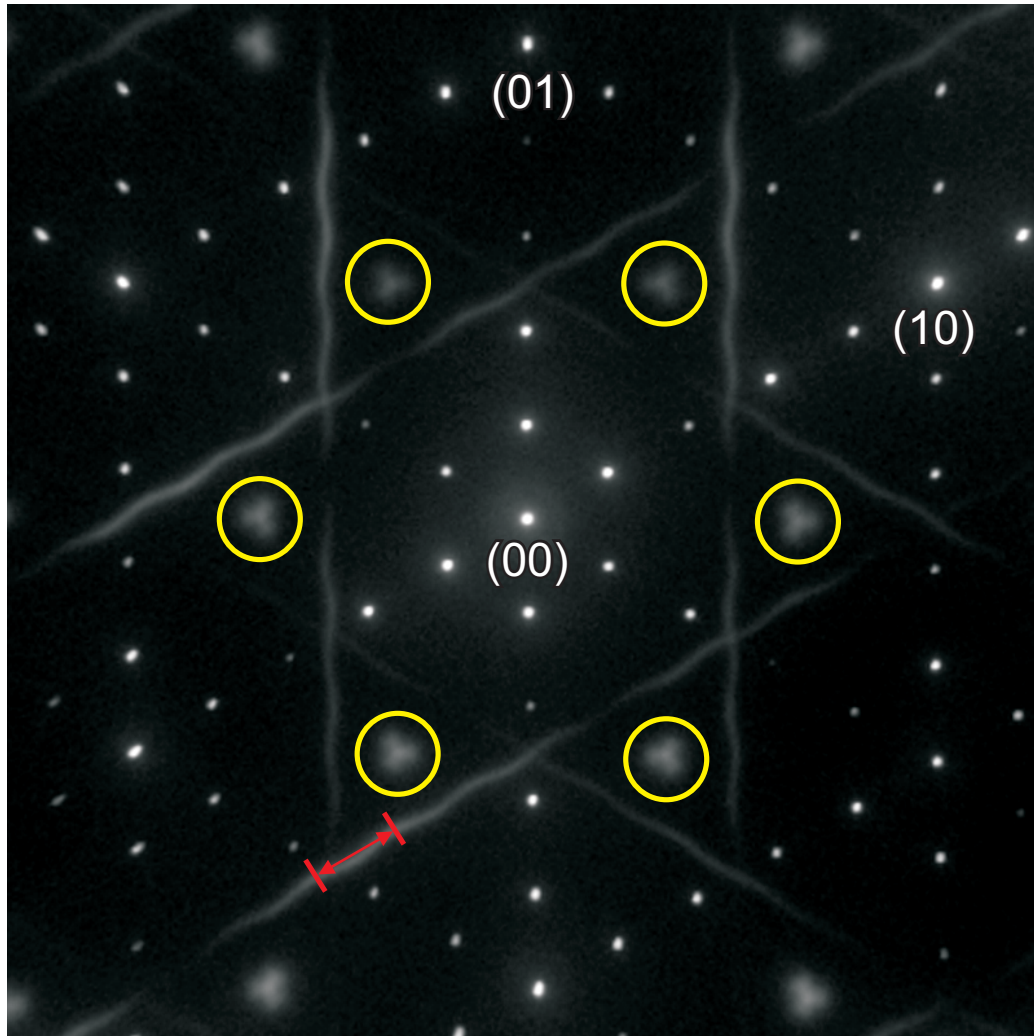


Abbildung 5.3: Die Si(111)-Oberfläche ist mit 0,50 ML Gold bei einer Temperatur von 620 °C präpariert worden. Bei Raumtemperatur zeigt sich die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase (gelbe Kreise) – die (7×7) -Phase ist nicht mehr vorhanden. Es hat sich eine deutliche Modulation der Streifen mit einer "Wellenlänge" von $1/5$ BZ ausgebildet (rot eingezeichnet). Die Zweiteilung der Streifen entlang der 5-fach Richtung ist vorhanden. (128 eV)

Goldanteil erst nach einer kleinen Übersättigung mit Gold einstellt, d.h. bei fortlaufender Erhöhung der Goldbedeckung dauerte es einige Zeit, bis sich die Rekonstruktion mit höherer Goldbedeckung – $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion – einstellt.

In Abb. 5.5 ist eine Präparationsserie zu sehen, bei der sukzessive bei derselben Temperatur mehr Gold aufgedampft worden ist. Eindeutig zu sehen ist, dass die Modulation im Beugungsbild erst im Bedeckungsschritt von 0,42 ML zu 0,49 ML auftritt. Weiteres Aufdampfen erhöht die Modulierung parallel zur Oberfläche nicht. Dies spricht dafür, dass die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase einen höheren Goldanteil als die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase besitzt. Zumindest ist die vollständige Bedeckung der Oberfläche mit der (5×2) -Rekonstruktion, d.h. vollständiger Auflösung der (7×7) -Rekonstruktion der reinen Oberfläche, notwendig.

Weiterhin fällt bei etlichen Messungen auf, dass die Modulation der Streifen mit steigender Temperatur zunimmt (siehe auch Abb. 5.4). Für eine unterschiedliche Goldbedeckung in Abhängigkeit von der Substrattemperatur spricht eine Untersuchung von Yuhara et al.[100] über die Diffusion von Gold in das Volumen des Substrats. Dabei wurde festgestellt, dass die Goldbedeckung für den Übergang von einer gemischten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -/ (5×2) -rekonstruierten Oberfläche zu einer reinen (5×2) -rekonstruierten Oberfläche von der Substrattemperatur abhängt. Die in diesem Artikel präsentierten Werte für drei verschiedene Temperaturen besitzen keine einheitliche Tendenz – der Wert für die niedrigste Temperatur weicht von den anderen beiden ab, so dass nicht eindeutig von einer steigenden oder fallenden Übergangstemperatur gesprochen werden kann. Ein weiterer Hinweis darauf, dass die (5×2) -rekonstruierten Bereiche bei höheren Temperaturen mit mehr Gold übersättigt werden können ergibt sich aus der Beobachtung von Świąch et al.[83]. Bei höheren Temperaturen fallen die sich schlagartig aus (5×2) -rekonstruierten Bereichen bildenden $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Inseln größer aus. Dies muss allerdings unter dem Vorbehalt betrachtet werden, dass die Diffusionslänge der Goldatome mit steigender Temperatur zunimmt. Mit steigender Diffusionslänge kann Gold aus einem größeren Umkreis, nur durch

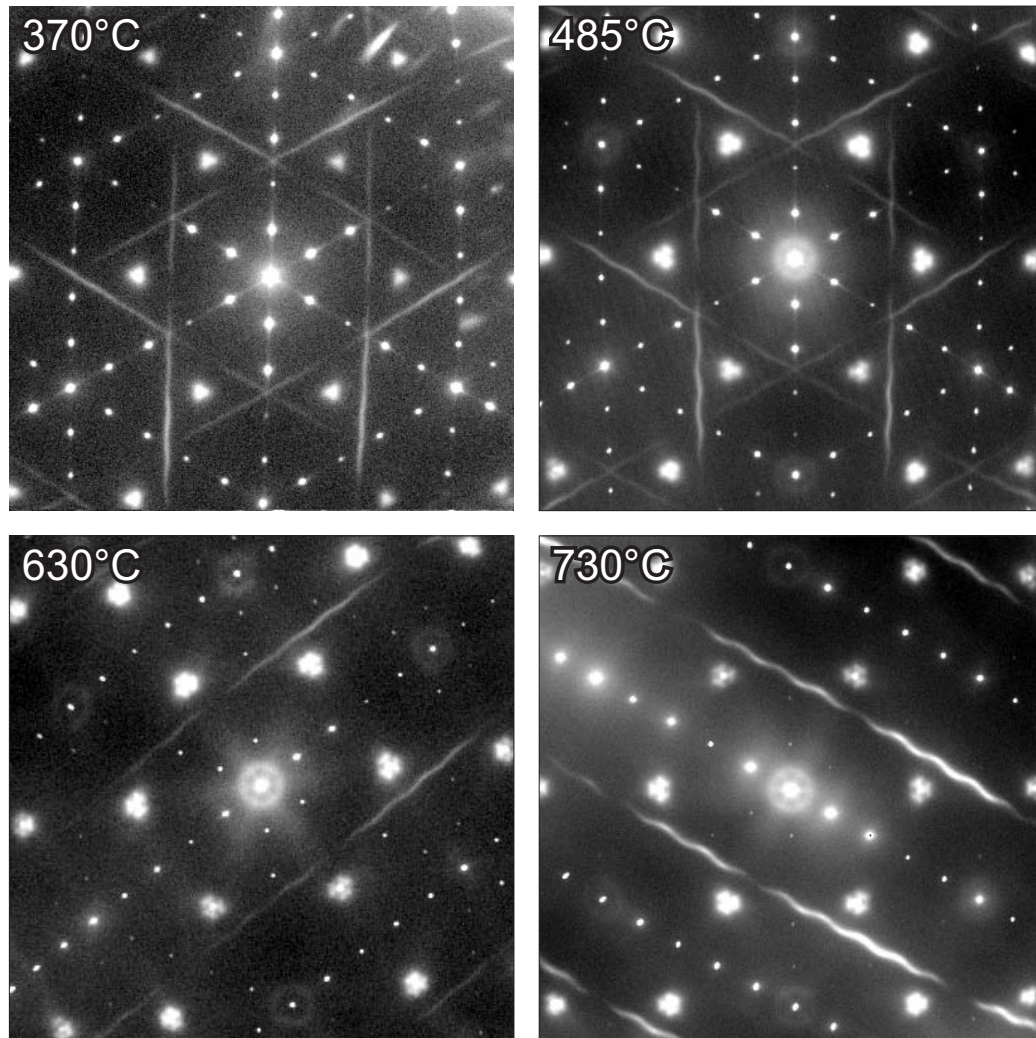


Abbildung 5.4: Dargestellt ist die wellenartige Modulation der (5×2) -Phase für verschiedene Präparationstemperaturen. Auf allen Bildern ist ersichtlich, dass die (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase ist (siehe auch Abb. 5.3). Die Modulation ist bei niedrigen Präparationstemperaturen um die 400 °C kaum zu sehen. Ebenso sind die (5×1) -Reflexe länglich, da die Domänen sehr viel schneller in 2-fach- als in 5-fach-Richtung wachsen (siehe auch Abb. 6.8 für Detail). Die Modulation bildet sich im Bereich um 500 °C und ist bei hohen Präparationstemperaturen um 700 °C am deutlichsten ausgeprägt. Die Reflexe sind nun rund, da die (5×2) -rekonstruierten Bereiche deutlich größer sind und es ein thermisch aktiviertes Wachstum in der 5-fach Richtung gibt (siehe Abschnitt 6.3). Bei höheren Präparationstemperaturen wird eine Domänenrichtung auf Kosten der beiden anderen Domänenrichtungen dominanter (siehe auch Abschnitt 6.5). Ebenso zu sehen ist die Ausbildung eines so genannten Henzlerringes um den Hauptreflex und den Beugungsreflexen erster Ordnung aufgrund einer mittleren Domänengröße der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche. Auch dieser Ring ist bei höheren Präparationstemperaturen scharf ausgeprägt. Es lässt sich eine sechszählige Symmetrie erkennen. (Anmerkung: Es handelt sich um Bilder verschiedener Proben, Energie jeweils 128 eV)

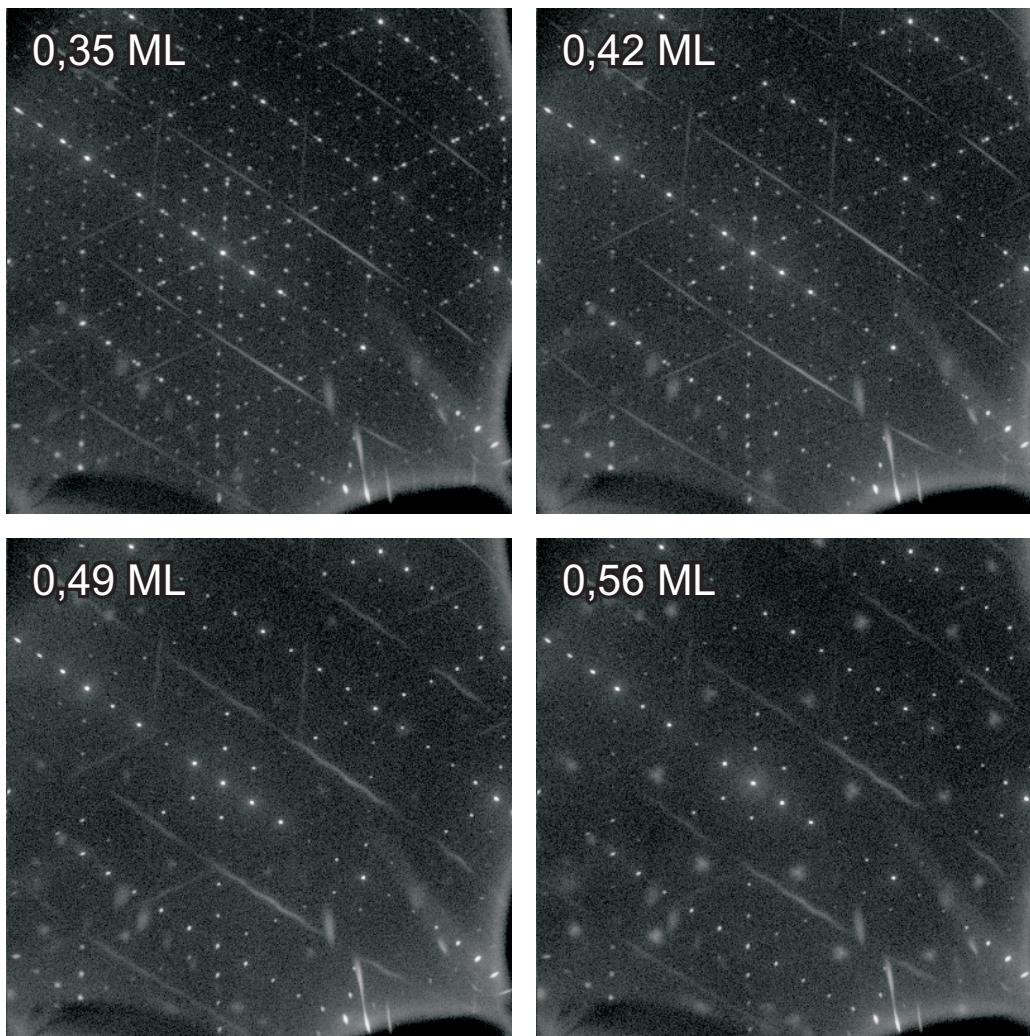


Abbildung 5.5: Präparation mit Gold in mehreren Bedeckungsschritten bei 640 °C – Aufnahmen jeweils bei Raumtemperatur. Die wellenartige Modulation bildet sich erst für die Koexistenz der (5×2) -Phase mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase aus – im Schritt von 0,42 ML zu 0,49 ML Goldbedeckung. Im Schritt von 0,49 ML zu 0,56 ML werden die Reflexe der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase stärker und es bildet sich ein deutlicher Ring um den Hauptreflex aus. Die Modulation der (5×2) -Streifen nimmt dabei nicht weiter zu. (Energie 128 eV)

Stufen begrenzt, von den sich bildenden $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Bereichen aufgenommen werden.

Um zu untersuchen, ob die Modulation eine Eigenschaft einer Zwischenphase zwischen (5×2) -rekonstruierten und $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen darstellt, wurden bisher nicht veröffentlichte Echtzeit-Mikroskopie Untersuchungen von Meyer zu Heringdorf mit einem LEEM angestellt, die hier nicht abgebildet sind. Bei Dunkelfeldabbildungen können in der Brennebene – die bei entsprechender Abbildung wie ein Beugungsbild aussieht – Ausschnitte gemacht werden, d.h. dass z.B. nur (5×2) -rekonstruierte Bereiche einer der drei möglichen Domänenrichtungen dargestellt werden. Ein Ausschnitt aus den modulierten Streifen der (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase führte zu dem Ergebnis, dass die Modulation eine Eigenschaft der (5×2) -rekonstruierten Bereiche ist und sich weitgehend gleichmäßig auf diese verteilt.

Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass die für die Modulation verantwortlichen Bereiche bei Abkühlung von Präparationstemperatur auf Raumtemperatur wachsen, bzw. sich besser ordnen. Ein weiteres Indiz dafür, dass sich ein Überschuss an Gold in den (5×2) -rekonstruierten Bereichen befindet, ist die stärkere Bindung des Golds in den (5×2) -rekonstruierten Bereichen gegenüber $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen - die Bindungsenergie ist 2,8 eV zu 2,6 eV[100].

All diese Ergebnisse und Beobachtungen deuten darauf hin, dass die (5×2) -rekonstruierten Bereiche bei hohen Temperaturen eine höhere Goldmenge von bis zu etwa 0,1 ML² aufnehmen können, die beim Abkühlen des Substrats in die Rekonstruktion eingebaut werden müssen. Dieser Anteil kann sich sogar noch erhöhen, da beim Abkühlen (5×2) -rekonstruierte Bereiche auf Kosten der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche mit höherer Goldbedeckung wachsen[83]. Eine einfache Annahme, wie das Gold auf der (5×2) -Rekonstruktion in der heißen Phase gebunden sein könnte, ist ein Gittergas mit eingeschränkter Beweglichkeit in Richtung der Reihen der (5×2) -Rekonstruktion. HT-STM Aufnahmen von Hasegawa et al.[31] zeigen bei

²Abschätzung aus dem dem Wert von 0,54 ML als Bedeckungsgrenze für 575 °C in [100] und der normalen Bedeckung von 0,40 ML Gold

dieser Temperatur eine starke Verschmierung entlang der Reihen, die auf eine starke Beweglichkeit von Atomen auf den Adatomplätzen hindeutet. Weiterhin sind die kleineren, aber markanten Merkmale in der (5×2) -rekonstruierten Unterlage (siehe Abb. 5.10) nicht zu erkennen, was sich als eine höhere Beweglichkeit der gesamten Unterlage zumindest in 2-fach Richtung bei Temperaturen ab 500 °C interpretieren lässt (siehe auch Abschnitt 6.4). Da die Modulation der Streifen nur ab etwa diesen Präparationstemperaturen auch im Beugungsbild gut auszumachen ist, bzw. eine Beweglichkeit in 5-fach Richtung für diese (siehe auch Abb. 6.9, Seite 144) Temperaturen gefunden worden ist, sollte dieses Verhalten für ein Modell der "eingefrorenen" (5×2) -Rekonstruktion bei Raumtemperatur berücksichtigt werden.

5.2.3 Analyse der Streifen der (5×2) -Rekonstruktion im Beugungsbild

In diesem Abschnitt wird die Entwicklung der (5×2) -Phase in Abhängigkeit von der Präparationstemperatur untersucht. Dazu wird die Halbwertsbreite der Streifen auf halber Brillouin-Zone untersucht (siehe Abb. 5.6). Dabei wird zwischen der (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase – d.h. niedrige Goldbedeckung (siehe Abb. 5.2) – und der (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase – d.h. hohe Goldbedeckung (siehe Abb. 5.3, Seite 50) – unterschieden.

Wie in Abb. 5.7 zu sehen, ist die Halbwertsbreite der Streifen senkrecht zur 5-fach Richtung bei Koexistenz mit der (7×7) Phase über den gesamten Temperaturbereich recht stabil um 1,5 % Brillouin-Zone. Als schwache Tendenz lässt sich nur feststellen, dass die Streifenbreite mit steigender Temperatur abnimmt.

Wie in Abb. 5.8 zu sehen, liegt die Halbwertsbreite der Streifen für die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase bei niedrigen Temperaturen ebenfalls bei 1,7 % BZ. Die Halbwertsbreite wächst mit steigender Präparationstemperatur jedoch stark an – eine Änderung von 100 °C führt zu einer Änderung in der Größenordnung von 15 % in der Halbwertsbreite.

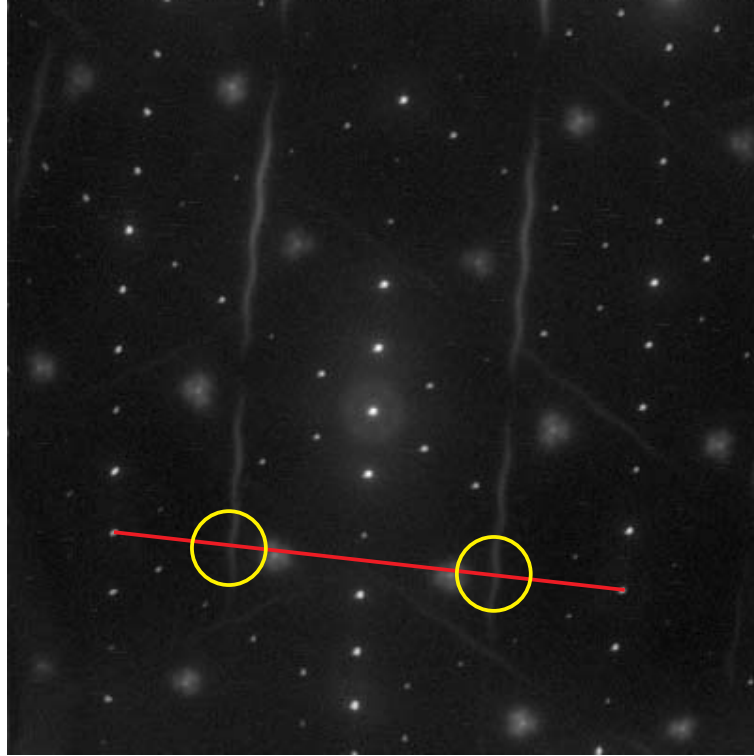


Abbildung 5.6: Für die Ermittlung der Halbwertsbreite wird für die dominanteste Domänenrichtung im Beugungsbild ein 1D-Profil entlang der roten Linie zwischen den Beugungsmaxima erster Ordnung an den Enden erstellt. Die Länge des 1D-Profiles ist $\sqrt{3} \cdot 100\%$ Brillouin-Zone. Die Breite der Streifen wird mit einem Gaußfit zwischen 38% BZ und 45% BZ bzw. 126 % BZ und 133 % BZ bestimmt und gemittelt. Bei diesem Querschnitt ist gewährleistet, dass der Schnitt durch ein "Maximum" bzw. ein "Minimum" der modulierten Streifen geht und somit genau senkrecht zu diesen Streifen an dieser Stelle ist.

Der Fehler im Fit ist mit etwa 30 % dabei relativ groß.

In (5×2) -rekonstruierten Bereichen gibt es Phasenverschiebungen um eine Gitterkonstante (siehe Abb. 5.11, Seite 62), die zu einer Begrenzung von Domänen entlang der 2-fach Richtung und damit zu einer Verbreiterung der Reflexe im Beugungsbild – hier Streifen – in dieser Richtung führt. Die Aussage der in Abb. 5.7 präsentierten Messung ist also, dass für eine (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase die Dichte der Phasenverschiebungen unabhängig von der Präparationstemperatur ist. Nach Umrechnung

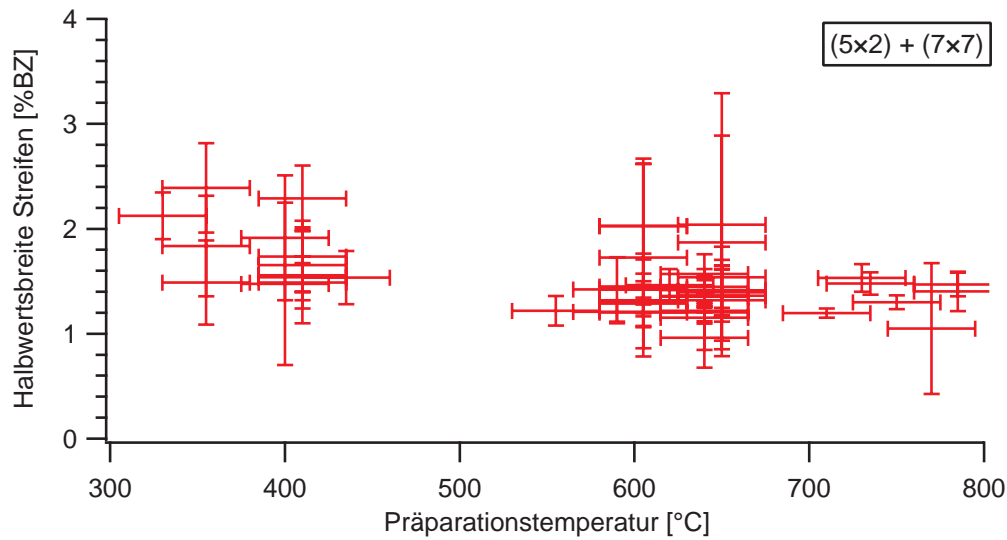


Abbildung 5.7: Aufgetragen ist die mittlere Halbwertsbreite der Streifen im Beugungsbild der (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase für verschiedene Präparationstemperaturen, aufgenommen bei Raumtemperatur. Der Fehler in der Temperaturmessung ist als 25°C angenommen. Der Fehler in der Halbwertsbreite ist der absolute Fehler in der Halbwertsbreite.

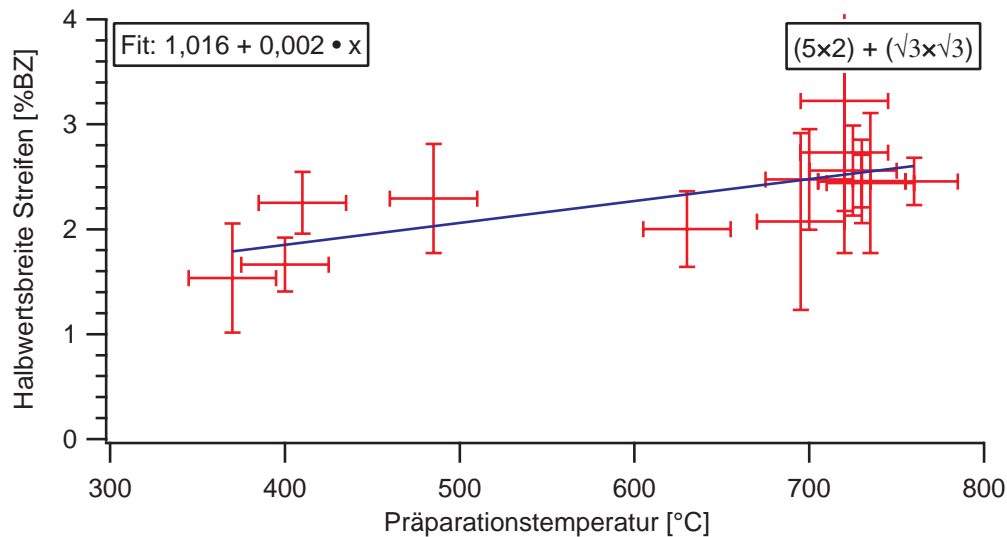


Abbildung 5.8: Aufgetragen ist die mittlere Halbwertsbreite der modulierten Streifen im Beugungsbild der (5×2) -Rekonstruktion für die Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase bei verschiedenen Präparationstemperaturen, aufgenommen bei Raumtemperatur. Ein linearer Fit der Messwerte ist blau eingezeichnet. Der Fehler in der Temperaturmessung ist als 25°C angenommen. Der Fehler in der Halbwertsbreite ist der absolute Fehler in der Halbwertsbreite.

der Halbwertsbreite in 2-fach Richtung³, ergibt sich ein mittlerer Abstand der Phasenverschiebungen von etwa 50 Gitterkonstanten.

Im Fall der Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase steigt demzufolge die Dichte der Phasenverschiebungen mit der Präparationstemperatur an. Als Erklärung bieten sich goldinduzierte Spiegeldomänen an (siehe Abschnitt 5.2.9, Seite 74), die als größere Bereiche nur in der Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase auf der Oberfläche existieren. Diese führen ebenfalls eine Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante ein. Die Halbwertsbreite der Streifen entspricht dabei etwa einer Länge von 35 Gitterkonstanten im Realraum. Als Folgeschluss lässt sich aus Abb. 5.8 ziehen, dass die Dichte der Spiegeldomänen mit steigender Präparationstemperatur zunimmt.

5.2.4 Atomares Bild der (5×2) -Rekonstruktion

Die (5×2) -rekonstruierten Domänen zeigen sich im Realraum als Anordnung von benachbarten Reihen mit dem Reihenabstand von $5 \cdot \cos 30^\circ = 4,33$ Gitterkonstanten, die mit hell erscheinenden Siliziumadatomten im häufigsten Abstand von 4 Gitterkonstanten dekoriert sind[4]. Die 5-fach der Rekonstruktion Richtung liegt in $[0\bar{1}1]$ -Richtung in einem Winkel von 60° zu den Reihen, die durch deutliche dunkle Streifen abgetrennt werden. Die 2-fach Richtung liegt entlang der Streifen in $[1\bar{1}0]$ -Richtung und lässt sich leicht an den kugelförmigen Erhebungen im Abstand von 2 Gitterkonstanten festmachen, die im weiteren als Merkmale in 2-fach Richtung bezeichnet werden. Diese sind nicht zu verwechseln mit den oben erwähnten, wesentlich auffälligeren Adatomten (zur Erläuterung Abb. 5.10). Wie in Abb. 5.9 zu sehen, besitzen benachbarte Reihen eine zufälligen Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante zueinander. Dies führt zu den bekannten Streifen im Beugungsbild für (5×2) -rekonstruierte Oberflächen, wie bei der Simulation der Beugungsbilder (Abb. 5.39, Seite 107) zu sehen ist.

³Profilrichtung ist um 30° gegenüber der 2-fach Richtung gedreht. Deshalb ist die Halbwertsbreite durch $\cos(30^\circ)$ zu teilen.

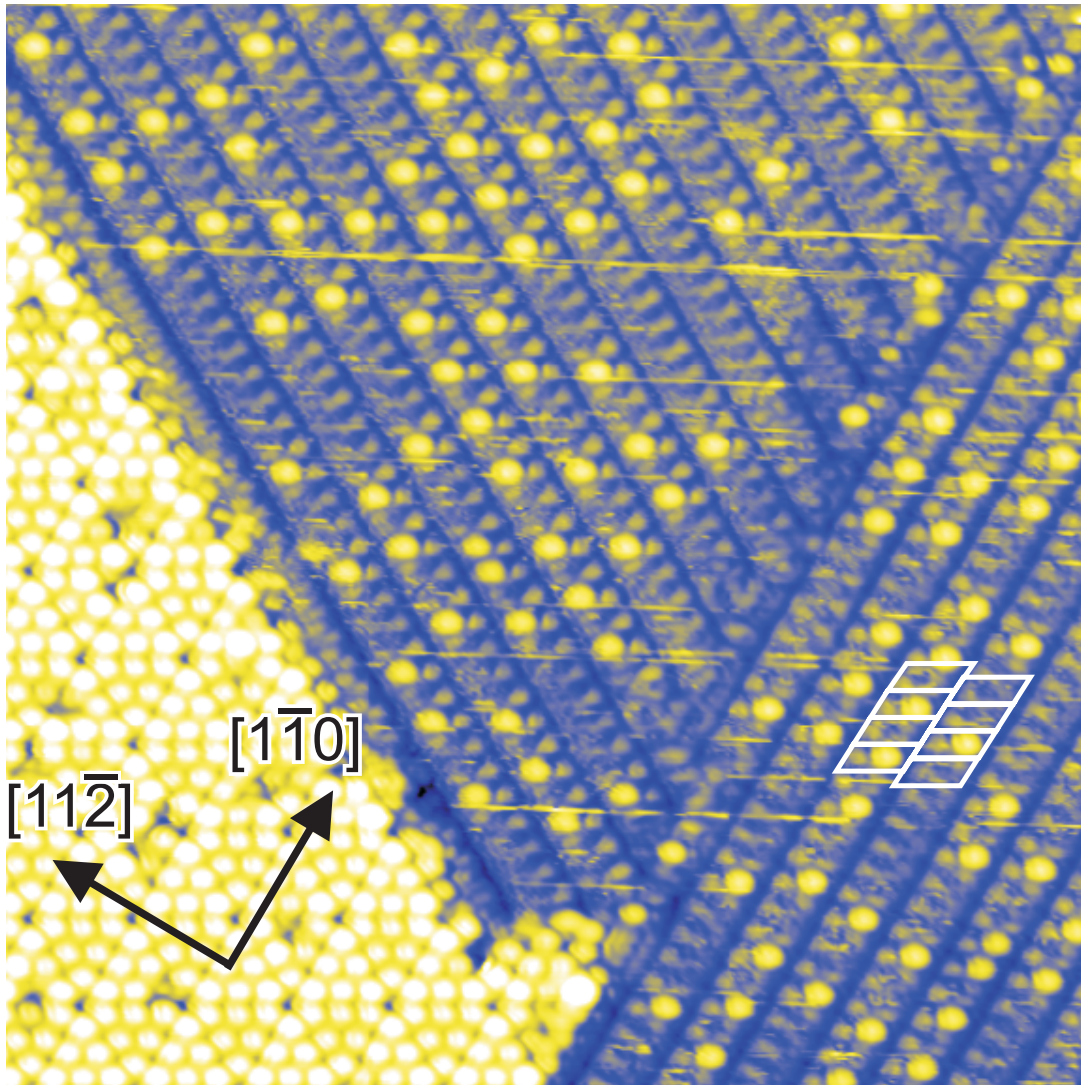


Abbildung 5.9: STM-Bild eines $280 \text{ \AA} \times 280 \text{ \AA}$ großen Ausschnitts einer mit 0,3 ML Gold präparierten Oberfläche. Zu sehen sind drei verschiedene Domänen. Links unten ist die wohlbekannte (7×7) -Rekonstruktion der reinen Si(111)-Oberfläche zu sehen. Rechts oben sind zwei (5×2) -rekonstruierte Domänen verschiedener Richtung zu sehen. Die Einheitszellen der (5×2) -Rekonstruktion sind an Merkmalen der 2-fach Richtung aufgehängt – nicht zu verwechseln mit den deutlich heller erscheinenden Siliziumadatomten (siehe Abb. 5.10 zur Erläuterung). Deutlich zu sehen ist eine Phasenverschiebung der zwei benachbarten Reihen um eine Gitterkonstante. (-0,6 V; 0,4 nA)

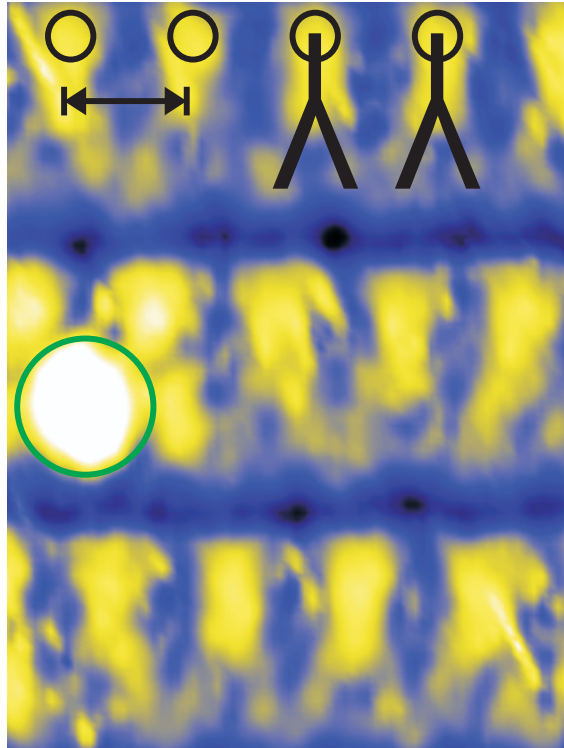


Abbildung 5.10: Gedrehter Ausschnitt aus Abb. 5.9 mit drei (5×2) -rekonstruierten Reihen. Die 2-fach Richtung der (5×2) -rekonstruierten Domäne ist horizontal ausgerichtet. Die markanten Merkmale in 2-fach Richtung sind mit kleinen Ringen markiert. Diese Merkmale laufen in einem Y-förmigen Merkmal aus, wie schon von O'Mahony et al.[60] in STM-Bildern präsentiert. Der angezeigte Abstand ist 2 Gitterkonstanten.

Der große Ring markiert ein Siliziumadatom, das die benachbarten Merkmale in 2-fach Richtung elektronisch erhöht. Der typische Abstand von Adatomen zueinander ist 4 Gitterkonstanten, also ein Adatom jede zweite (5×2) -Einheitszelle (siehe auch Abschnitt 5.2.11).

5.2.5 Phasenverschiebungen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche

Bei genauerer Betrachtung der Daten stellt sich heraus, dass die Phasenverschiebung nicht für Reihen als ganzes gilt, sondern nur für jeweils kurze Teilstücke der (5×2) -rekonstruierten Reihen, ganz analog wie es für Barium auf derselben Oberfläche von Schäfer et al.[69] gezeigt werden konnte. Eine einfache Annahme, dass Reihen mit einer Phasenverschiebung gegenüber benachbarten Reihen kondensieren und diese Phasenverschiebung beim weiteren Wachstum beibehalten, greift also zu kurz. Es existieren Phasenverschiebungen entlang der Reihen, die typischerweise einen Abstand von 20-40 (5×2) -Zellen zueinander besitzen. Stellen mit Phasenverschiebungen sind, wie in Abb. 5.11 zu sehen, nur schlecht auflösbar, die atomaren Merkmale in 2-fach Richtung verschwinden.

An dieser Stelle sollte angemerkt werden, dass es nicht beobachtet werden konnte, dass Adatome auf diesen Bereichen mit einer Phasenverschiebung sitzen können. Es fällt z.B. in Fig. 12 in [46] auf, dass auf der Oberfläche mit einer maximalen Sättigung von Siliziumadatomen Lücken in der Adatombedeckung mit Phasenverschiebungen zusammenfallen.

Der Einfluss von möglichen Anordnungen von Phasenverschiebung auf das Beugungsbild wird in Abschnitt 5.2.12, Seite 106 untersucht.

5.2.6 Spiegeldomänen

Nach eigenen Untersuchungen existiert zumindest bei Raumtemperatur von allen drei Rotationsdomänen der (5×2) -Rekonstruktion jeweils nur eine Spiegeldomäne. Makroskopisch bedeutet das für eine Oberfläche, dass alle (5×2) -Domänen einer Richtung ihre Merkmale der 2-fach Richtung (siehe Abb. 5.10, Seite 60) und damit ihre Einheitszellen zur selben Seite ausgerichtet haben. Da die Ausrichtung der (5×2) -Domänen über mehrere Proben desselben Wafers gleich geblieben ist, ist zu erwarten, dass allein die Ausrichtung der Stufen auf dieser Oberfläche die Ausrichtung der (5×2) -Spiegeldomänen festlegt – und sei es mittelbar über die Ausrichtung der Domänen der (7×7) -Rekonstruktion.

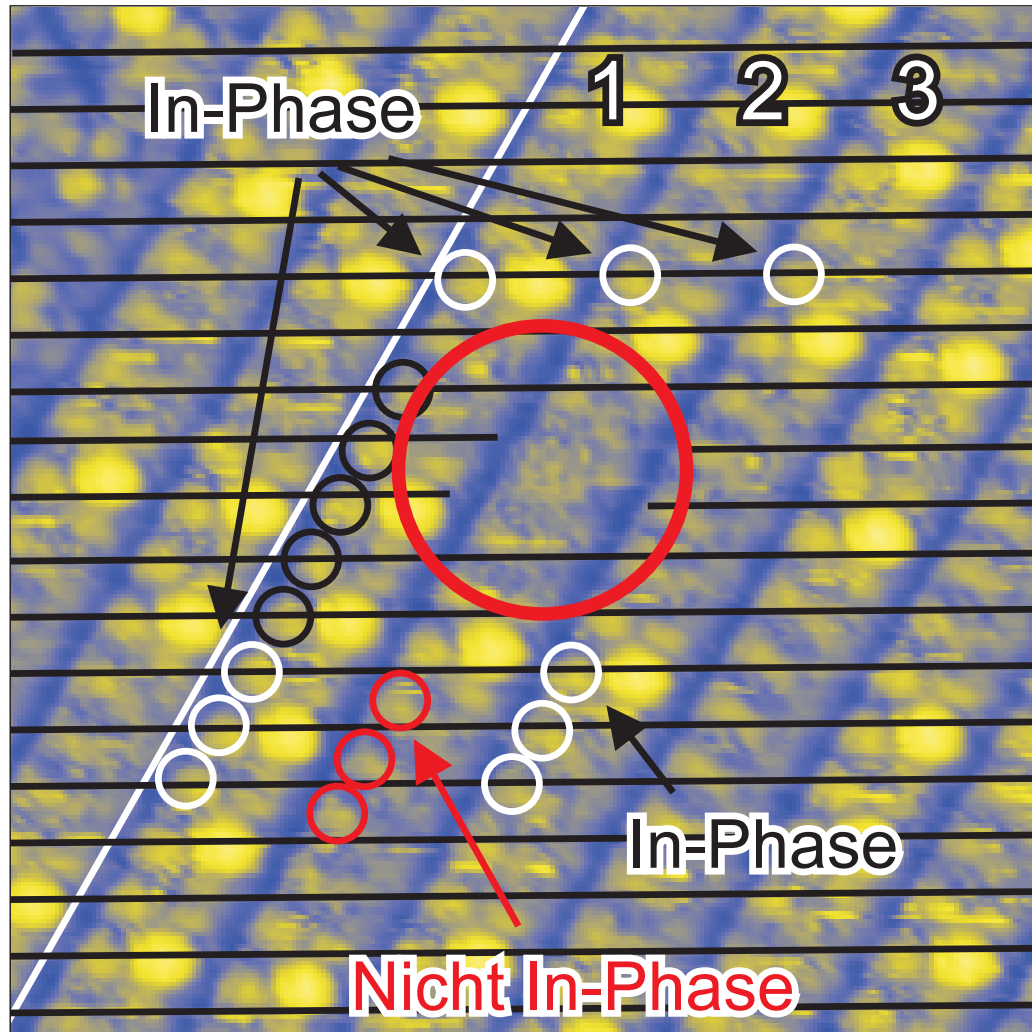


Abbildung 5.11: Dargestellt ist das STM-Bild einer Phasenverschiebung in einer (5×2) -rekonstruierten Domäne. Die schwarzen Gitterlinien entlang der 5-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion weisen einen Abstand von zwei Gitterkonstanten in 2-fach Richtung zueinander auf. Das Gitter ist an den Merkmalen der 2-fach Richtung der Reihe 1 – mit kleinen schwarzen Kreisen markiert – aufgehängt. Oben im Bild ist mit kleinen weißen Kreisen markiert, wie die Reihen 1 bis 3 in Phase sind. Unten sind nur die äußeren beiden Reihen 1 und 3 in Phase, die mittlere Reihe 2 – mit kleinen roten Kreisen markiert – ist um eine Gitterkonstante versetzt. Der Bereich der Phasenverschiebung ist mit einem großen roten Kreis markiert und fällt durch das Fehlen des runden Merkmals in 2-fach Richtung und einer generell schlechten Auflösung auf. $(-0,6 \text{ V}; 0,4 \text{ nA})$

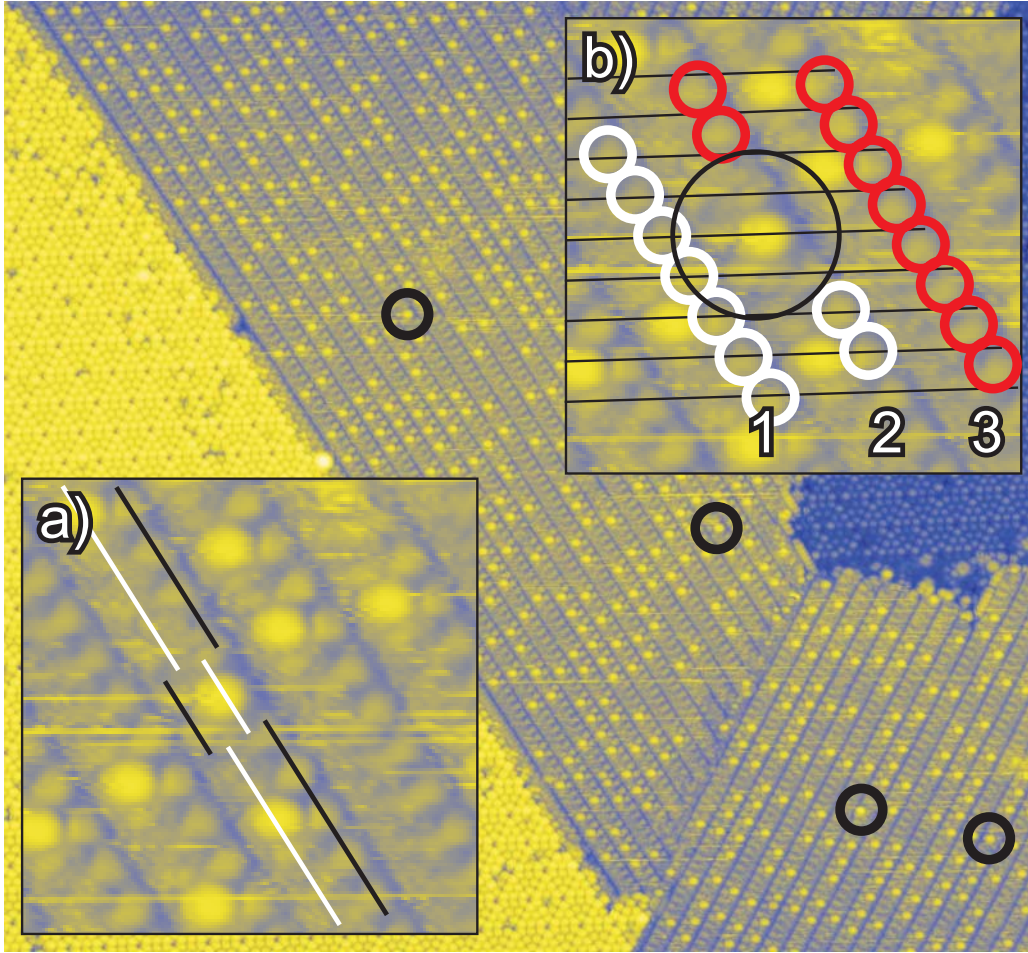


Abbildung 5.12: STM-Bild einer Oberfläche mit (5×2) -Phase und (7×7) -Phase der reinen Oberfläche in Koexistenz ($820 \text{ \AA} \times 750 \text{ \AA}$; $-0,6 \text{ V}$; $0,4 \text{ nA}$). Auf der oberen Terrasse links sind zwei (5×2) -Domänen unterschiedlicher Rotationsrichtungen entstanden. Alle vier Spiegeldomänen im großen Bild sind mit schwarzen Kreisen markiert. Diese Bereiche sind jeweils zwei (5×2) -Zellen groß und beinhalten ein Siliziumadatom.

In Ausschnitt a) ist mit den schwarzen Linien verdeutlicht, dass in der Spiegeldomäne die Merkmale der 2-fach Richtung auf der gegenüberliegenden Seite der Reihe liegen. Ebenso hat sich die laterale Position der Siliziumadatomene entsprechend angepasst, wie an der weißen Linien zu sehen ist. Die Intensität der Siliziumadatomene und die Form der Merkmale in 2-fach Richtung bleiben in der Spiegeldomäne gleich. Die Siliziumadatomene sitzen in der Spiegeldomäne ebenso mittig zwischen den Merkmalen der 2-fach Richtung.

Im Ausschnitt b) ist die Phasenverschiebung verdeutlicht, die eine Spiegeldomäne einführt. Ein Hilfsgitter ist an den Merkmalen der 2-fach Richtung der ersten Reihe aufgehängt. Reihe 1 und 3 sind entlang des Gitters um eine Gitterkonstante gegeneinander verschoben. Reihe 1 und 2 sind im unteren Teil des Ausschnitts in Phase, wie an den weißen Kreisen um die Merkmale der 2-fach Richtung ersichtlich. Ebenso ist am oberen Ende mit roten Kreisen deutlich gemacht, dass dort die Reihe 1 und 2 nunmehr nicht in Phase sind.

Wie in Abb. 5.12 zu sehen, gibt es jedoch in dem Bereich der Koexistenz mit der (7×7) -Phase kurze Abschnitte von zwei (5×2) -Zellen, die entlang der 2-fach Richtung gespiegelt sind (siehe Abb. 5.13). Die Form der runden Merkmale der 2-fach Richtung bleibt in diesen Spiegeldomänen dieselbe. In all diesen Spiegeldomänen sitzen einzelne Siliziumadatome, so dass solche Stellen von Yoon et al.[98] als Defektpartikel bezeichnet worden sind. Die Höhe und die Form der Adatome verändert sich in diesen Spiegeldomänen nicht – sie erscheinen in beiden Spiegeldomänen der Domänenrichtung gleich. Mit jeder Spiegeldomäne ist eine Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante verbunden. Diese Bereiche lassen sich relativ leicht auf der Oberfläche finden, indem das jeweilige STM-Bild mit einem Lineal durchgegangen wird. Da alle Siliziumadatome einer Reihe auf einer Linie liegen müssen, fallen Adatome in Spiegeldomänen durch ihren Versatz in zur 2-fach Richtung senkrechter Richtung auf.

Für die Art der Spiegelung der Einheitszelle gibt es wie in Abb. 5.13, Seite 65 skizziert zwei Möglichkeiten. Der Fall a) ist eine Spiegelung mit der 2-fach Richtung als Spiegelachse. Dies führt zu Einheitszellen mit ihren Merkmalen auf der gegenüberliegenden Seite der Einheitszelle.

Die zweite Möglichkeit – in b) dargestellt – ist eine Punktspiegelung, da eine einfache Spiegelung mit der 5-fach Richtung als Spiegelachse nicht möglich ist. Diese stellt eine einfache Drehung der Einheitszelle um 180° dar, die ebenso zu Merkmalen auf der gegenüberliegenden Seite einer (5×2) -rekonstruierten Reihe führt. Im STM-Bild lässt sich wegen der Symmetrie der Merkmale in der (5×2) -Zelle schlecht ein Unterschied zwischen diesen beiden Varianten feststellen. Da aber die 2-fach Richtung die Hauptwachstumsrichtung der (5×2) -rekonstruierten Bereiche ist, sich die Atome entlang dieser Richtung anordnen (siehe auch Abschnitt 7.3) und diese Art der Spiegelung zu einem Versatz der Berührung mit der benachbarten Reihe führt, ist eine Spiegelung entlang der 2-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion zu favorisieren.

Der Anteil der Zellen in Spiegeldomänen liegen in der Größenordnung von wenigen Promille aller (5×2) -Zellen. Je nach Ort auf der Oberfläche kann sich der Anteil der Spiegeldomänen jedoch dramatisch ändern. In Abb. 5.14 –

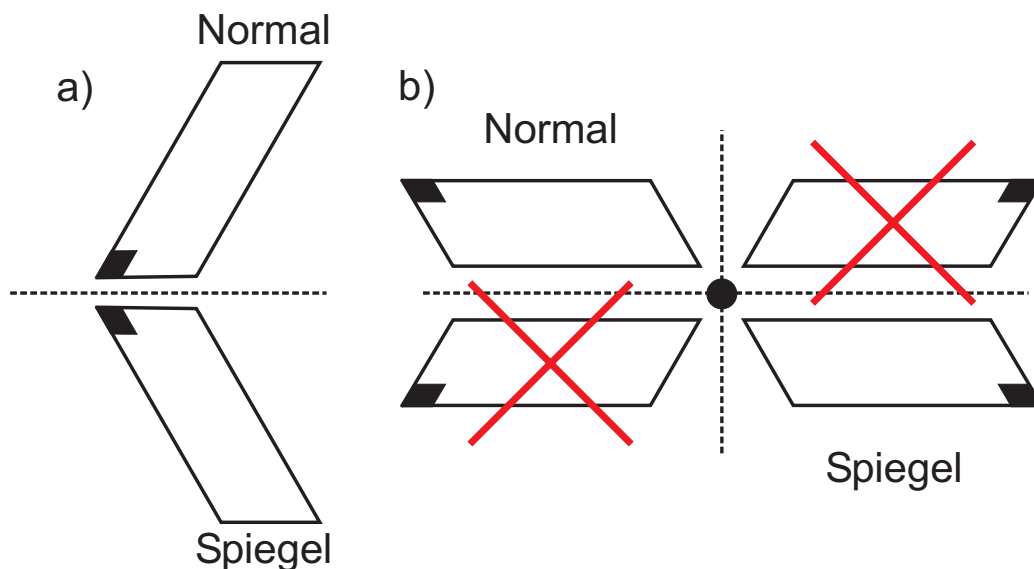


Abbildung 5.13: In a) dargestellt ist die Spiegelung entlang der 2-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion. Die Merkmale der Einheitszelle liegen auf der gegenüberliegenden Seite einer Reihe. Ebenso passt sich die gespiegelte Einheitszelle in eine Reihe ein.

In b) dargestellt ist eine Spiegelung entlang der 5-fach- bzw. dazu senkrechten Richtung. Beide Spiegelungen sind nicht möglich, da die gespiegelten Einheitszellen nicht in die aktuelle Reihe eingepasst werden können. Möglich wäre eine Punktspiegelung, die in der Ebene eine Drehung der Einheitszelle um 180° darstellt.

in der Nähe eines Domänenrands zu einer anderen (5×2) -Domäne gleicher Richtung aufgenommen – ist der Anteil an Spiegeldomänen gegenüber der in Abb. 5.12 deutlich – etwa um den Faktor 5 – erhöht⁴. Dies führt ebenso zu längeren Bereichen mit Spiegeldomänen, von denen nicht alle möglichen Plätze mit Adatomen besetzt sind. Siliziumadatome scheinen also zur Stabilisierung von längeren Spiegeldomänen nicht zwingend notwendig zu sein. Weiter fällt auf, dass sich die Merkmale der 2-fach Richtung für längere Spiegeldomänen geändert hat. In der Spiegeldomäne sind die Merkmale der 2-fach Richtung schmaler und leicht gekippt. Auch haben sich die direkt gegenüberliegenden Merkmale der benachbarten Reihe leicht geändert – sie sind nun runder.

⁴Es handelt sich hierbei um eine Präparation derselben Probe mit der gleichen Goldbedeckung bei derselben Präparationstemperatur.

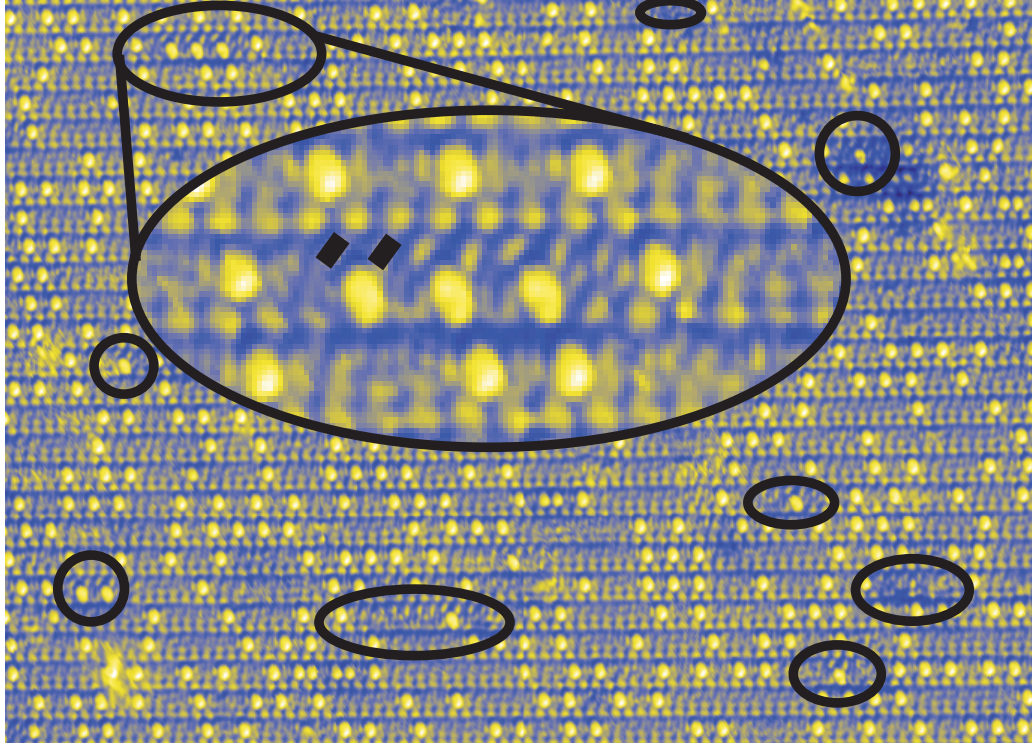


Abbildung 5.14: STM-Bild eines Oberflächenausschnitts mit höherer Dichte von Spiegeldomänen als in Abb. 5.12. Wie in diesem Bild zu sehen, gibt es vereinzelte Abschnitte innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Streifen, die an der 2-fach Richtung gespiegelt und zur Verdeutlichung mit Ellipsen markiert sind. Die Spiegelung besteht darin, dass die Merkmale in 2-fach Richtung (siehe Abb. 5.10) auf der gegenüberliegenden Seite der (5×2) -rekonstruierten Reihen liegen. Jede Spiegeldomäne ist mit dem Einbau einer Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante zu benachbarten Reihen verbunden. Im Ausschnitt ist die Spiegeldomäne links oben zu sehen. Die Merkmale der 2-fach Richtung sind in der Spiegeldomäne schmäler und leicht verkippt (markiert mit zwei schwarzen Strichen). Die Reihe oberhalb der Spiegeldomäne wird durch den Einbau der Spiegeldomäne elektronisch modifiziert – die Merkmale der 2-fach Richtung erscheinen runder und höher. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Änderung des Bereichs über eine Spiegelung wie in Abb. 5.12 hinausgeht. (-0,7 V; 0,4 nA)

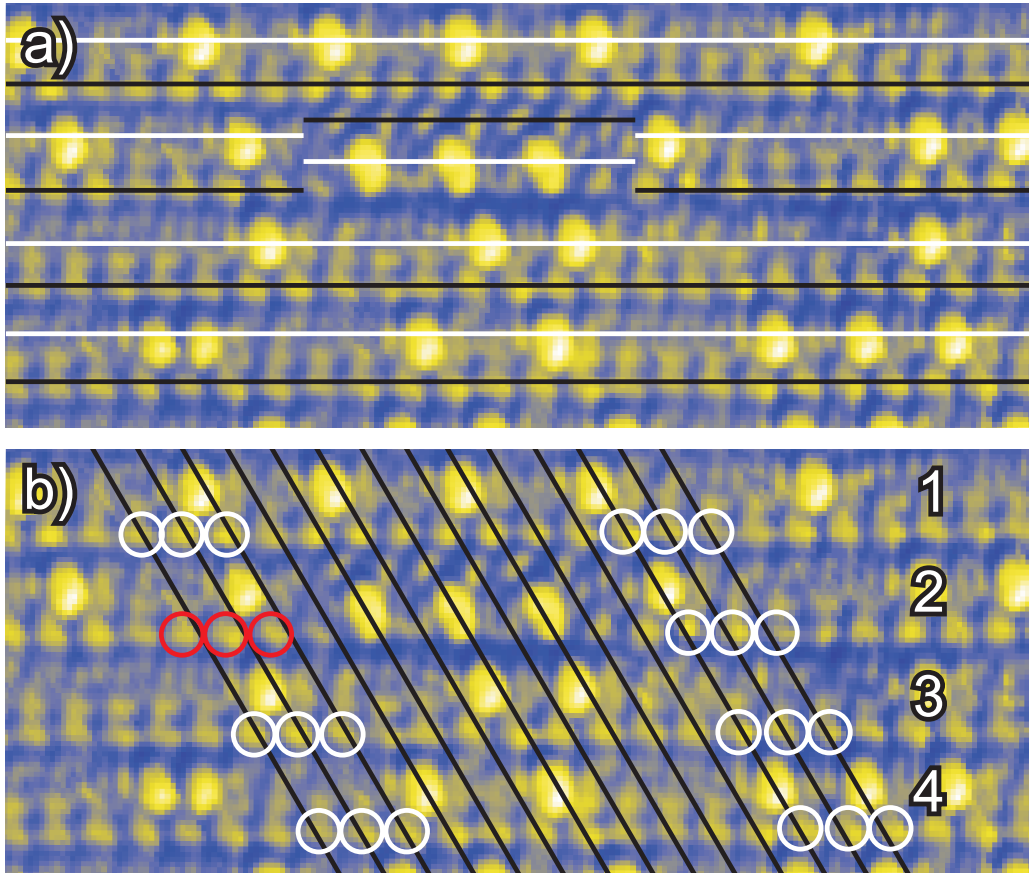


Abbildung 5.15: In a) ist die Spiegeldomäne anhand der Sprünge in dem schwarzen Strich entlang der Merkmale der 2-fach Richtung und dem weißen Strich entlang der Adatome in der (5×2) -Rekonstruktion zu erkennen. Im Bereich der Spiegeldomäne ändert sich die Anordnung der Merkmale.

Zur Verdeutlichung der mit Spiegeldomänen (Abb. 5.14) verbundenen Phasenverschiebung ist in b) ein Raster entlang der 5-fach Richtung über einige benachbarte Reihen gelegt und an den Merkmalen der 2-fach Richtung Reihe aufgehängt. Die Reihen 1,3 und 4 sind entlang des Gitters in Phase. Zur Verdeutlichung ist dies mit kleinen weißen Kreisen über den Merkmalen der 2-fach Richtung markiert. Am rechten Ende des Gitters ist Reihe 2 mit der Spiegeldomäne noch mit den anderen Reihen in Phase, am linken Ende nicht mehr, wie mit roten Kreisen über den Merkmalen der 2-fach Richtung markiert. (-0,7 V; 0,4 nA)

5.2.7 Atomares Bild der (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase

Die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase sieht auf dem ersten Blick genau so wie die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase aus. Ebenso unterscheidet sich die Fouriertransformierte über große Bereiche – fern von den $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen – qualitativ nicht von dem Beugungsbild für eine (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase, die Streifen fallen allerdings breiter aus. Die 5-fach Periodizität bzw. 2-fach Periodizität ist von derselben Qualität wie für die normale (5×2) -Phase. Erst bei genauerer Betrachtung fällt auf, dass die Siliziumadatome einen anderen Adsorptionsplatz als normal besitzen, da sie sich nicht mittig zwischen den Merkmalen der 2-fach Richtung befinden, sondern dazu leicht versetzt sind (siehe Abb. 5.17). Dass sich dabei anscheinend die (5×2) -Unterlage verändert hat, ist ebenso an den Y-förmigen Merkmalen zu sehen, die in einen hellen Streifen in 2-fach Richtung auslaufen (siehe Abb. 5.17). Dieser Streifen wird von Siliziumadatomen gestört. Gegen eine weitreichende Änderung der (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase im Gegensatz zur (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase sprechen die Leitfähigkeitsmessungen von Yamazaki et al.[97], die für Bedeckungen von 0,44 ML - 0,52 ML Gold keine nennenswerten Unterschiede in der Leitfähigkeit der (5×2) -rekonstruierten Bereiche gefunden haben. Dazu ist allerdings anzunehmen, dass die Leitfähigkeit durch die Domänenränder auf der Oberfläche begrenzt sein kann.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich aus den Adatomen der (5×2) -rekonstruierten Bereiche in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase schließen lässt, dass sich die (5×2) -Rekonstruktion von denen der (5×2) in Koexistenz mit der (7×7) unterscheidet. Eine Möglichkeit ist, dass sich der Goldanteil in der Rekonstruktion erhöht und sich somit andere Adsorptionsplätze für Adatome ergeben, die eher dem alten Modell von Erwin (siehe Abschnitt 7.4, Seite 161) entsprechen. Da es keine Röntgenmessungen, z.B. Röntgenbeugung [70] oder stehende Röntgenwellen [7], zu einer solchen (5×2) -Phase gibt, lässt sich allerdings nicht sagen, ob und wo mehr Gold-

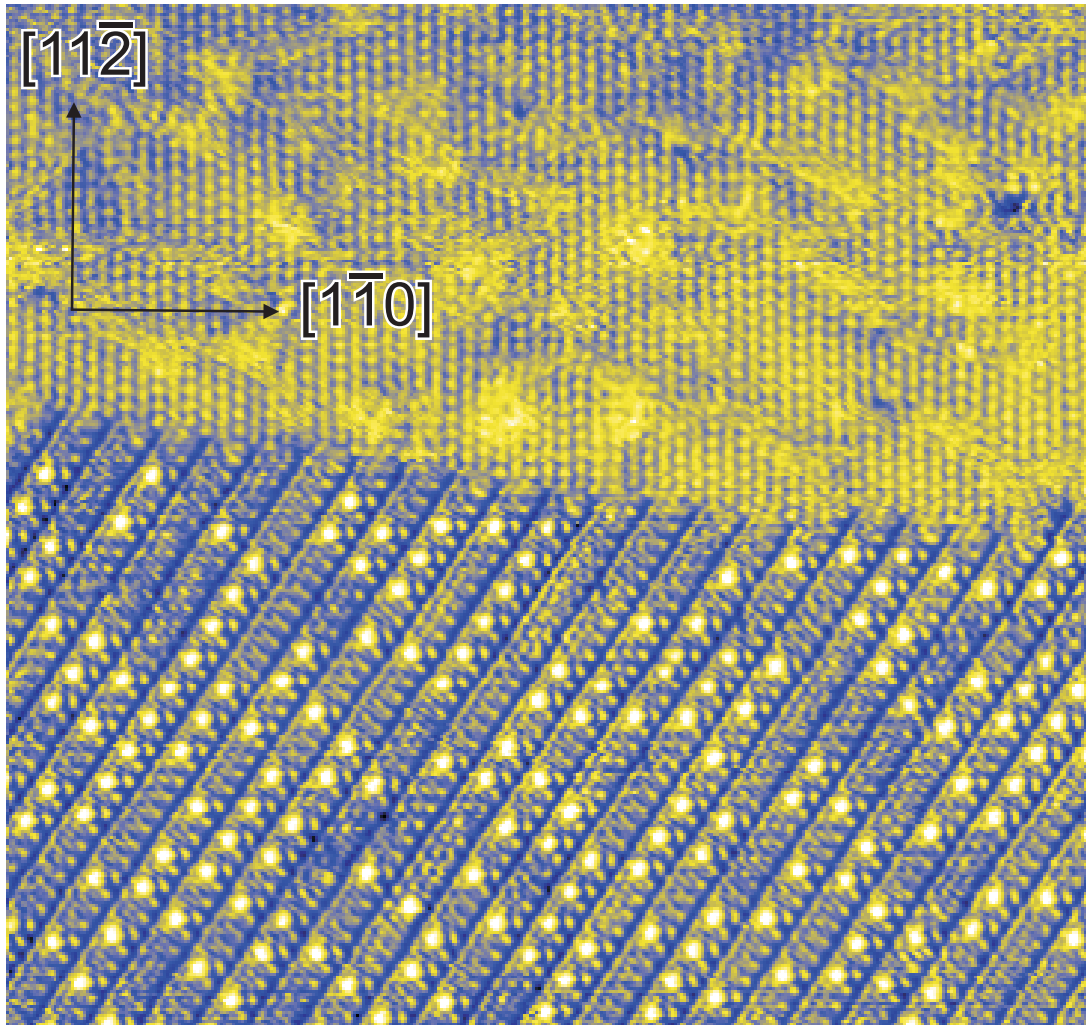


Abbildung 5.16: $395 \text{ \AA} \times 370 \text{ \AA}$ großes STM Bild einer bei $610 \text{ }^\circ\text{C}$ mit $0,55 \text{ ML}$ Gold präparierten Oberfläche. Die (5×2) -Domäne unten ist in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase oben im Bild. ($-0,9 \text{ V}$; $0,4 \text{ nA}$)

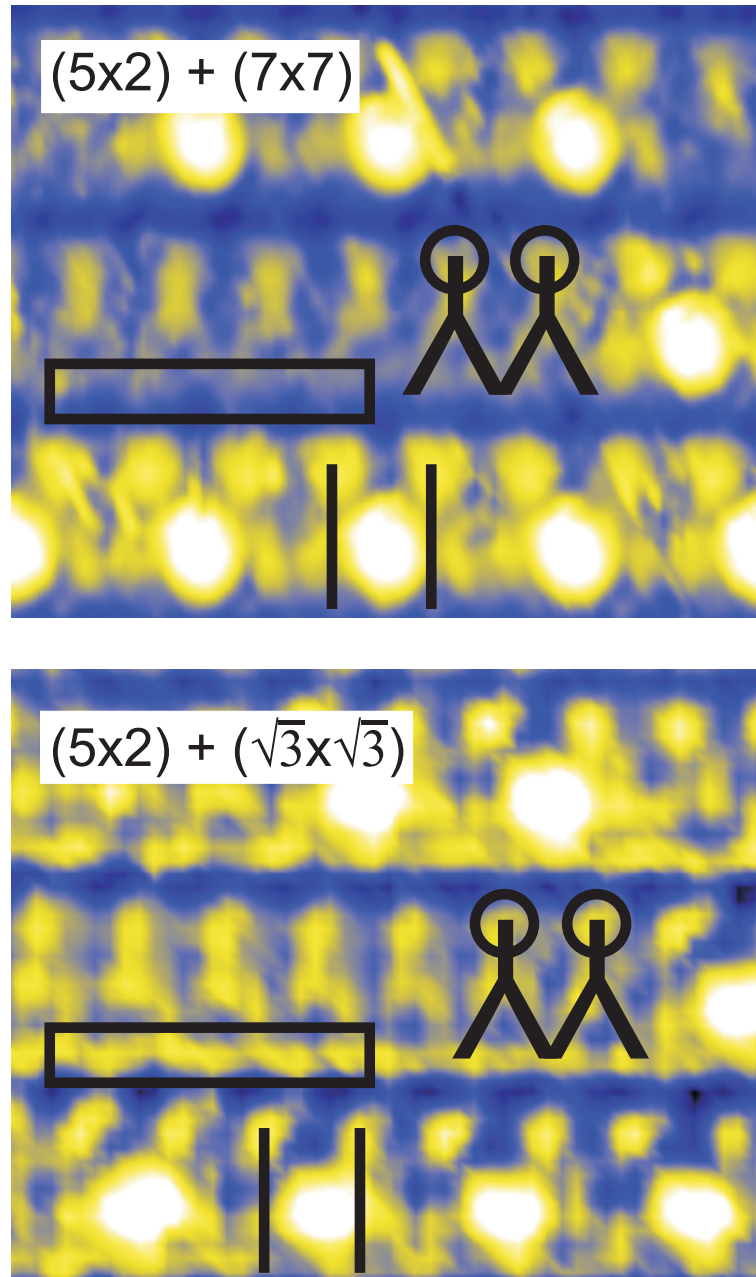


Abbildung 5.17: Gedrehte Ausschnitte aus Abb. 5.10 bzw. Abb. 5.16. Die 2-fach Richtung ist horizontal ausgerichtet. Die (5×2) in Koexistenz mit der (7×7) -Phase und (5×2) in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase besitzen die charakteristischen Merkmale in 2-fach Richtung (Kreise), die Teil eines Y-förmigen Merkmals sind. Die Adatome sind in der Koexistenzphase mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase nicht mehr mittig zwischen den Merkmalen (senkrechte Striche). Die unteren Enden der Y-förmigen Merkmale sind gegenüber der Koexistenzphase mit der (7×7) -Phase elektronisch erhöht (Kasten). (-0,6 V bzw. -0,9 V; 0,4 nA; Z-Skala gleich)

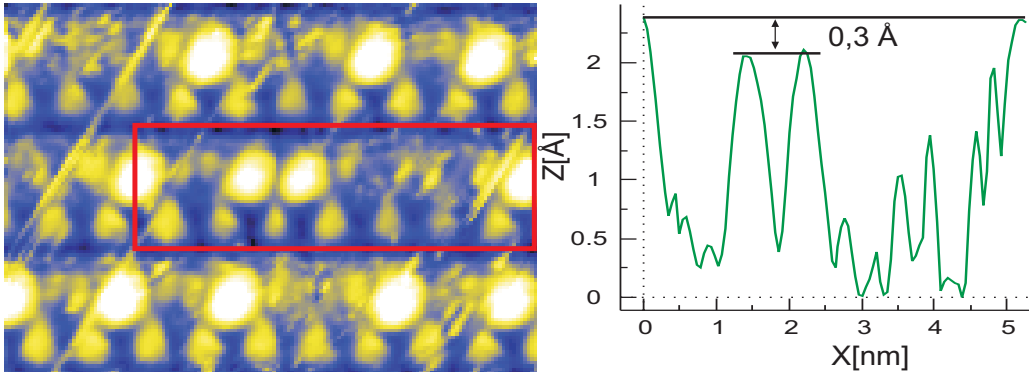


Abbildung 5.18: Dargestellt ist ein gedrehter Ausschnitt aus Abb. 5.9. Die 2-fach Richtung ist horizontal ausgerichtet. Im Bereich der roten Markierung befindet sich ein Paar von Adatomen in benachbarten (5×2) -Einheitszellen. Rechts ist das über drei Pixel gemittelte Höhenprofil der Adatome in diesem Bereich dargestellt. Deutlich zu sehen ist, dass das Adatompaar niedriger erscheint als die sonstigen Adatome. Der markierte Höhenunterschied beträgt in diesem Bild etwa $0,3 \text{ \AA}$. ($70 \text{ \AA} \times 50 \text{ \AA}$; $-0,6 \text{ V}$; $0,4 \text{ nA}$)

reihen eingeführt werden.

5.2.8 Die Adatome der (5×2) -rekonstruierten Bereiche

Zu allen (5×2) -rekonstruierten Bereichen gehören – wie in Abb. 5.9 zu sehen – deutlich sichtbare, unregelmäßig verteilte, helle Kugeln. Dabei handelt es sich um Siliziumadatome (s.u.). Diese sitzen auf immer denselben Positionen innerhalb der Einheitszelle [31], wie anhand der Merkmale in 2-fach Richtung im Abstand von zwei Gitterkonstanten zu sehen. Der Adsorptionsplatz liegt bei horizontaler bzw. vertikaler Ausrichtung von Bildern genau mittig zwischen den Merkmalen der 2-fach Richtung. Werden die Merkmale der 2-fach Richtung bzw. die Adatome mit Geraden verbunden, dann ist der Abstand zwischen diesen Geraden $1,69 \pm 0,16$ Gitterkonstanten. Der häufigste Abstand der Adatome zueinander ist 4 Gitterkonstanten in 2-fach Richtung. Kleinere Abstände sind deutlich weniger wahrscheinlich und treten mit einer Wahrscheinlichkeit von unter 1% auf. Adatome, die in benachbarten (5×2) -Zellen d.h. im Abstand von 2 Gitterkonstanten liegen, erscheinen gegenüber anderen Adatomen weniger hell und damit niedriger, wie in STM-Bildern

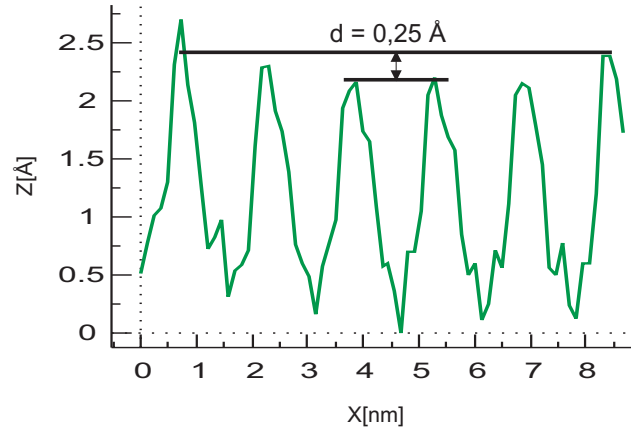


Abbildung 5.19: Höhenprofil in 2-fach Richtung einer (5×2) -rekonstruierten Reihe über eine Kette von Adatomen. Für dieses Bild wurde senkrecht zur 2-fach Richtung über den Bereich der Adatome gemittelt – deswegen erscheint die Korrugation ungewöhnlich niedrig. Der Abstand d entspricht dabei etwa $0,25 \text{ \AA}$. (STM-Bild: $-0,9 \text{ V}$; $0,4 \text{ nA}$)

von Hasegawa et al.[31] gezeigt (siehe Abb. 5.18).

Nach Yoon et al.[99] weisen Ketten von Adatomen im Abstand von 4 Gitterkonstanten zueinander ein Höhenprofil im STM auf. Dies ist ein elektronischer Effekt, der die äußeren Adatome höher als die inneren erscheinen lässt. Dies lässt sich allein aus der geänderten elektronischen Umgebung der Adatome am Rand gegenüber den Adatomen innerhalb der Kette erklären. Dafür spricht ebenso die von Yoon et al. gefundene Konstanz des Höhenunterschieds für verschiedene Kettenlängen. Eine Ausbildung einer stehenden Ladungsdichtewelle, die von den Enden der Kette reflektiert wird, erscheint eher unwahrscheinlich. Dafür müsste sich allein die Grundschiwingung, die keinen Knoten besitzt, ausbilden.

Nach Hill et al.[38] bestimmen die mit den Adatomen verbundenen Oberflächenzustände das Spektrum in der Nähe der Fermienergie. Die Bestimmung der elektronischen Eigenschaften aus Photoemissionsspektroskopie (ARPES) ist nicht problemfrei. Trotz einer ungeradzahlgigen Anzahl von Elektronen sind die (5×2) -rekonstruierten Bereiche halbleitend und nicht metallisch, wie von Himpsel et al.[39] bzw. Matsuda et al.[56] mit Photoemissionsspektroskopie gezeigt. Nach einer früheren Messung von Collins et

al.[14] sind die Bereiche entlang der Reihen metallisch, während die elektronischen Zustände senkrecht dazu lokalisiert sind.

Diesen Widerspruch hat lokale Spektroskopie mit Rastertunnelmikroskop[99] aufgelöst, die sowohl metallische als auch halbleitende Bereiche gefunden hat. Die Abschnitte mit den Adatomen im regelmäßigen Abstand von vier Gitterkonstanten – Adatomketten genannt – sind dabei halbleitend, während die übrigen Abschnitte metallisch sind. Es sollte in diesem Zusammenhang der interessante experimentelle Befund für die Indium-induzierte (4×1) -Rekonstruktion auf Si(111) erwähnt werden. Für diese wurde in STM-Aufnahmen gefunden, dass Defekte den Übergang zwischen der (8×2) - und (4×1) -Rekonstruktion befördern[62]. Dieser Übergang ist nach einer ab-initio Rechnung, d.h. einer Simulation, ein Metall-Isolator Übergang[79]. Analog könnte hier ein Übergang zwischen (5×2) - und (5×4) -Rekonstruktion erleichtert werden. Eine (5×4) -Rekonstruktion ist hierbei eine (5×2) -Rekonstruktion mit Adatomen im Abstand von vier Gitterkonstanten entlang einer Reihe, die mit einem gleichen Bereich in der benachbarten Reihe in Phase ist.

Da nach frühen Untersuchungen bekannt war, dass der Goldanteil für (5×2) -rekonstruierte Bereiche fraktional ist z.B. $0,443 \text{ ML} \pm 0,008 \text{ ML}$ aus einer LEEM Messung von Bauer[5], lag es nahe, die nicht regelmäßig angeordneten Adatome als Goldatome anzunehmen[31]. Bei einem sehr häufigen Abstand von vier Gitterkonstanten, wie schon von Baski et al.[4] in STM-Bildern gesehen, führt dies zu einem zusätzlichen Goldanteil von etwas weniger als $0,05 \text{ ML}$ Gold pro Einheitszelle, was dem von Bauer gemessenen Wert erstaunlich nahe kommt.

Da mit steigender Goldbedeckung auf der Oberfläche der Anteil der Siliziumadatome, wie von Baski et al. schon bemerkt[4], nicht steigt, ist diese Interpretation als quasi Goldüberschuss zumindest fragwürdig.

Als definitives Experiment zur Natur der Adatome dürfte ein Experiment von Kirakosian et al. [46] gelten. In diesem Experiment führte ein zusätzliches Aufdampfen von Siliziumatomen zu einer Vermehrung der Adatome auf den (5×2) -rekonstruierten Bereichen, während ein zusätzliches Aufbringen von Goldatomen zu einer Umwandlung der (5×2) -rekonstruierten Bereiche in

$(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierte Bereiche führte.

Die hier vorgestellten Untersuchungen weisen allesamt darauf hin, dass es sich bei den Adatomen auf festen Plätzen innerhalb der (5×2) -Einheitszellen um Siliziumatome im häufigsten Abstand von 4 Gitterkonstanten in 2-fach Richtung handelt. Die mögliche Korrelation der Adatomdichte mit der fraktionalen Goldbedeckung für eine geschlossene (5×2) -rekonstruierte Oberfläche lässt sich auch anderweitig deuten (siehe Abschnitt 7.5.3, Seite 169). Da es einen deutlichen elektronischen Effekt der Adatome gibt, bietet es sich an, die Anordnung der Adatome auf der Oberfläche zu untersuchen (siehe Abschnitt 5.2.11, Seite 82).

5.2.9 Goldadatome und Spiegeldomänen

Wie in Abb. 5.20 zu sehen, gibt es bei Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase Merkmale in den (5×2) -rekonstruierten Zellen, die als Goldadatome zu interpretieren sind. Diese besitzen eine deutlich geringere Intensität als die Siliziumadatome - ähnlich wie im eigentlich überholten Modell von Erwin[18] vorhergesagt. Senkrecht zu den (5×2) -rekonstruierten Reihen gesehen sitzen die Goldadatome mittig zwischen den Merkmalen in 2-fach Richtung. Dies steht im Kontrast zu den Siliziumadatomen, die lateral leicht in 2-fach Richtung versetzt erscheinen. Parallel zu den (5×2) -rekonstruierten Reihen sitzen die Goldadatome etwa auf derselben Höhe wie die Siliziumadatome.

Weitere Aussagen können getroffen werden:

- Goldadatome können im Gegensatz zu Siliziumadatomen benachbarte (5×2) -Zellen besetzen, bilden sogar bevorzugt Ketten (siehe Abb. 5.20 b)).
- Es sind keine Goldadatome innerhalb der Siliziumadatomketten zu sehen.
- Die Goldadatome sitzen mehrheitlich innerhalb von Spiegeldomänen, d.h. in um 180° gegenüber der dominanten Domänenrichtung gedrehte Domänen (siehe Abb. 5.20 a)). Wie bei den Spiegeldomänen bei

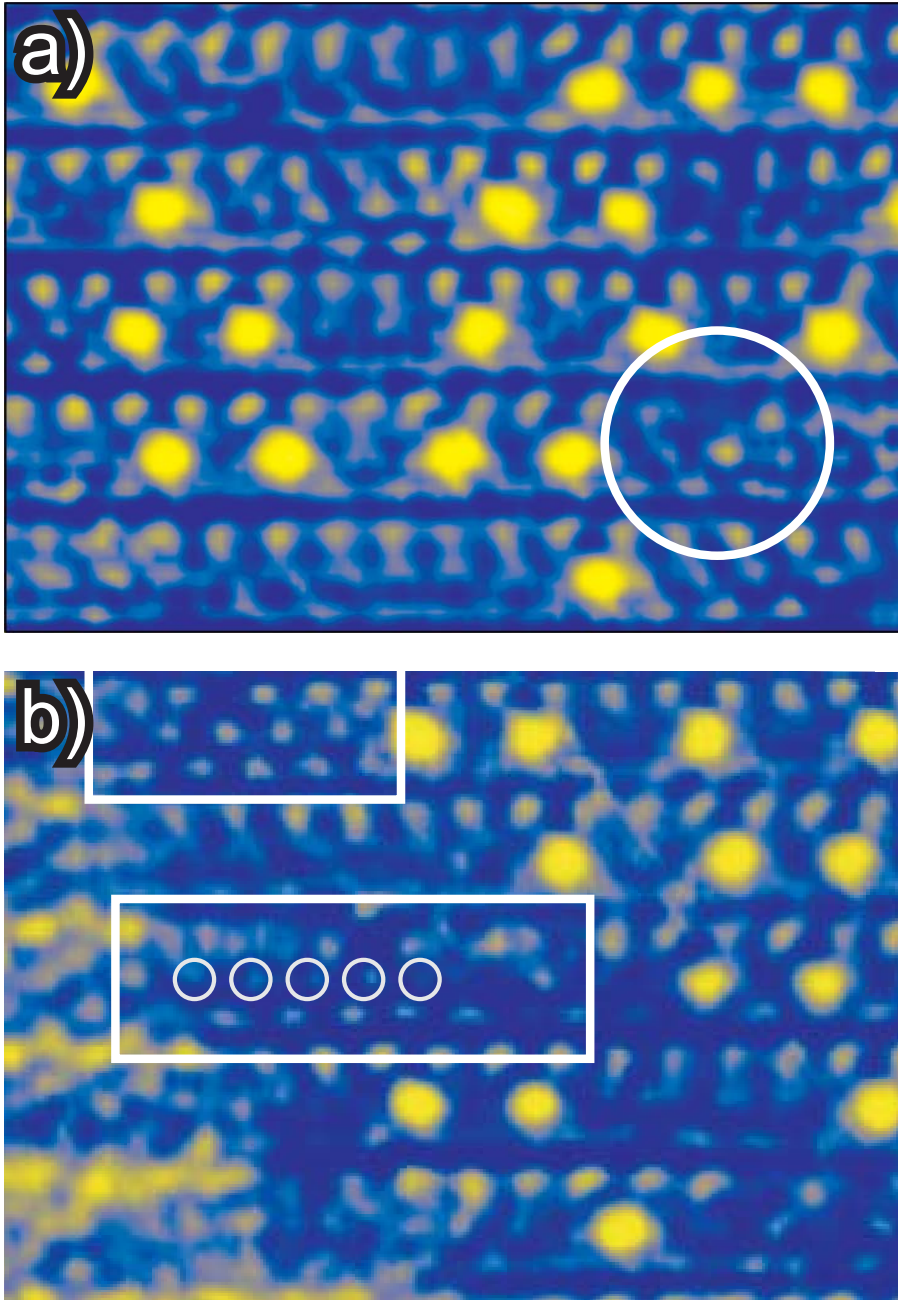


Abbildung 5.20: Ausschnitt aus einer (5×2) -rekonstruierten Domäne. Die (5×2) -Domänen dieser Präparation sind in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase. In a) ist ein einzelnes Goldatom mit einem weißen Kreis markiert. Es sitzt in einer Spiegeldomäne, d.h. die Merkmale der 2-fach Richtung (siehe Abb. 5.10) sind am unteren Ende der Reihe und nicht oben. Es hebt sich wesentlich weniger deutlich als die Siliziumatome in den benachbarten Domänen von der Unterlage ab. Ebenso ist der Adsorptionsplatz genau mittig zwischen den Merkmalen der 2-fach Richtung.

In b) ist links der Randbereich zur benachbarten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion zu sehen. Innerhalb der weißen Kästen befinden sich jeweils mehrere Goldatome in benachbarten Zellen.

$(120 \text{ \AA} \times 85 \text{ \AA}; -0,9 \text{ eV}; 0,40 \text{ nA})$

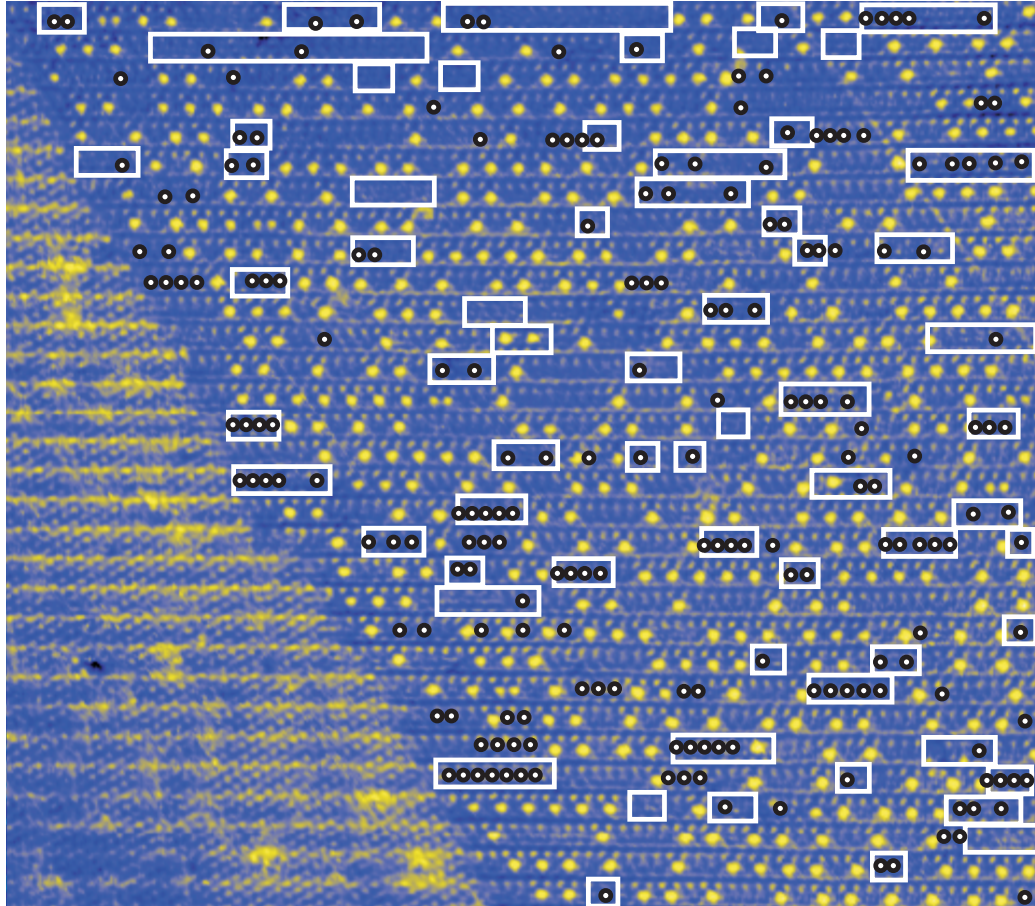


Abbildung 5.21: Die Goldadatome (siehe Abb. 5.20) der (5×2) -rekonstruierten Fläche sind über einen größeren Bereich mit schwarzen Ringen markiert. Links im Bild zu sehen ist ein $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierter Bereich. Die Spiegeldomänen in diesem Ausschnitt sind mit weißem Rand markiert. Die Goldadatome adsorbieren mehrheitlich in den Spiegeldomänen. Der Goldanteil in Form von Goldadatomen liegt in diesem Bild bei etwa 0,007 ML. Der Anteil der Spiegeldomänen an der Gesamtfläche des (5×2) -rekonstruierten Bereichs liegt bei etwa 13,5 %. ($585 \text{ \AA} \times 515 \text{ \AA}$; -0,9 V; 0,4 nA)

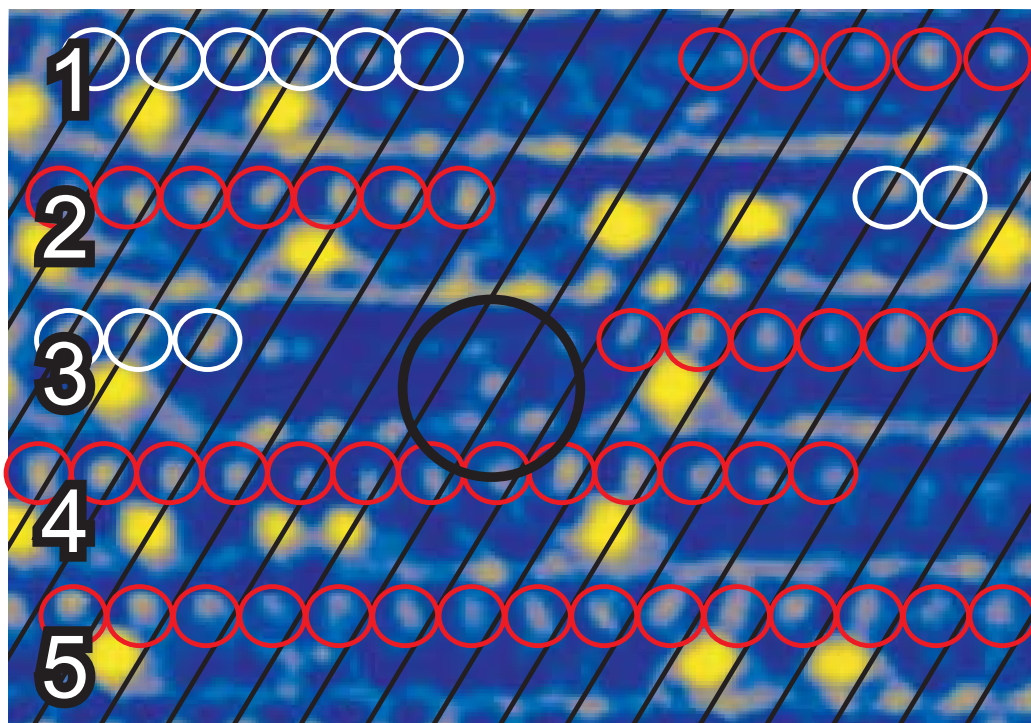


Abbildung 5.22: Über diesen Ausschnitt ist ein Gitter im Abstand von 2 Gitterkonstanten in horizontaler Richtung gelegt. Merkmale der 2-fach Richtung (siehe Abb. 5.10, Seite 60), die mit dem Gitter zusammenfallen, sind weiß, Merkmale, die nicht auf Gitterpositionen sitzen, mit roten Kreisen markiert. Die Merkmale für die ungespiegelten Bereiche sind in den Reihen nach oben ausgerichtet. Die Reihen 1-3 weisen Spiegeldomänen auf, die eine Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante erzeugen – deutlich gemacht durch den Wechsel der Farbe der Kreise um die Merkmale der 2-fach Richtung. Das als Goldatom interpretierte Merkmale in Reihe 3 – mit einem schwarzen Kreis markiert – sitzt in einer Spiegeldomäne, die die Merkmale der 2-fach Richtung auf der unteren Seite aufweist. ($120 \text{ \AA} \times 85 \text{ \AA}$, $-0,9 \text{ V}$; $0,4 \text{ nA}$)

niedriger Bedeckung gehen auch diese Domänen mit einer Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante einher. An vielen Stellen lässt sich keine Aussage über die Ausrichtung der Spiegeldomänen machen, da die Merkmale in 2-fach Richtung nicht vorhanden sind, bzw. wegen des schwachen Kontrasts der Goldadatome gegenüber der Unterlage.

- Goldadatome können bei einer (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase nicht beobachtet werden.

Abschätzung der Goldadatombedeckung

Die im vorherigen Abschnitt beschriebenen Goldadatome sind eine mögliche Erklärung für den gemessenen Goldanteil von $0,443 \pm 0,008$ ML[5] für den Übergang zur $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$. Dazu eine Abschätzung: Die maximale Bedeckung von einem Adatom pro (5×2) -Zelle führt zu einer maximalen Bedeckung von $\Theta_{\text{Adatom}_{\text{max}}} = 1/10\text{ML}$ für Adatome. Die Bedeckung an Siliziumadatomen ist etwa $\Theta_{\text{Si-Adatome}} = 0,036$ ML. Zu berücksichtigen ist dabei noch, dass innerhalb von Siliziumadatomketten keine Goldadatome sitzen. Die wenigsten Adatomplätze entfallen aus diesem Grund, wenn es nur Paare von Adatomen gibt. Dies ist als allgemeine Annahmen nicht unrealistisch, da die Länge der Ketten exponentiell abfallend ist (siehe auch Abschnitt 5.2.11).

Also ist der maximale Anteil an Goldadatomen gemäß dieser Annahmen:

$$\Theta_{\text{Au}_{\text{max}}} = \Theta_{\text{Adatom}_{\text{max}}} - \Theta_{\text{Si-Adatome}} - 0,5 \cdot P_{\text{Kette}} \cdot \Theta_{\text{Si-Adatome}} = 0,054\text{ML}$$

Dabei ist $P_{\text{Kette}} = 0,57$ der Anteil der Siliziumadatome, die in Ketten angeordnet sind. Der Vorfaktor 0,5 kommt vom Anteil der Adatomplätze innerhalb einer Zweierkette. Die Bedeckung von 0,054 ML ist mehr als ausreichend, um den fraktionalen Goldanteil zu erklären.

Neben den zahlreichen, mit den Goldadatomen verbundenen Spiegeldomänen, gibt es ebenso die schon in Abschnitt 5.2.6 vorgestellten Spiegeldomänen mit Siliziumadatomen bzw. ganz ohne Adatome. Für eine Induzierung der Spiegeldomänen durch Adatome sprechen Ergebnisse von Daimon et al.[15], bzw. eigene Messungen mit zusätzlichem Silber und Blei. Folge ei-

ner zusätzlichen Adsorption von Lithium[15] ist eine Aufspaltung der Streifen entlang ihrer Längsrichtung in alternierende, fast punktförmige Reflexe bzw. alternierende Streifenabschnitte im Fall von Silber und Blei im Beugungsbild. Die Modulationslänge in 5-fach Richtung ist ebenso wie für die wellenförmige Modulation im Fall von Gold (siehe Abb. 5.3) $1/5$ BZ. Dies deutet ebenso auf adsorbatinduzierte Ordnung von Phasenverschiebungen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche hin.

Die Merkmale der 2-fach Richtung in den nicht gespiegelten (5×2) -rekonstruierten Bereichen sind, wie in Abb. 5.17 zu sehen, gekippt. Die Merkmale der 2-fach Richtung sind in den Spiegeldomänen in Abb. 5.14 – dort ist die (5×2) in Koexistenz mit der (7×7) -Phase auf der Oberfläche – ebenfalls gekippt. Die Merkmale der 2-fach Richtung in den Bereichen mit den Goldadatomen sind dagegen entsprechend der Bereiche in Koexistenz mit der (7×7) -Phase (siehe Abb. 5.10) – also "normal". Also könnte eine alternative Interpretation dahingehen, dass es sich bei den Bereichen mit den Goldadatomen um noch nicht zu Spiegeldomänen umgewandelte metallische Abschnitte ohne Siliziumadatom (siehe Abschnitt 5.2.8) handelt. Dies würde zu einer wesentlich höheren Goldbedeckung – mindestens 4 Goldatome der Rekonstruktion pro (5×2) -Einheitszelle + 1 Goldatom als Adatom + 1 Goldatom für Umwandlung zu einer Spiegeldomäne = 6 Goldatome – in den weit längeren Bereichen mit den Siliziumadatomten führen. Gegen diese Interpretation kann die einfache Tatsache angeführt werden, dass sich die Ausrichtung der (5×2) -Einheitszellen im Vergleich zu Präparationen mit einer (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase auf derselben Probe nicht ändert.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der fraktionale Goldanteil für eine vollständige (5×2) -Rekonstruktion einer Oberfläche bis zu einer Bedeckung von 0,45 ML Au mit Goldadatomten erklärt werden kann – in Übereinstimmung mit der Bedeckungsbestimmung von Bauer et al.[5].

Ebenso lässt sich aussagen, dass in der Nähe von $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen – die einen höheren Goldanteil als die (5×2) -Rekonstruktion aufweisen – der Anteil an Spiegeldomänen stark erhöht ist – im obigen Beispielbild liegt der Flächenanteil sogar über 12 %. Der Anteil

an Spiegeldomänen schwankt deutlich – bei den Stichproben lag er zwischen 8 % und 14 %.

Ein interessantes Ergebnis liefert eine LEEM Untersuchung von Świąch et al.[83], die bei konstanter Goldbedeckung die Temperatur einer (5×2) und $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ rekonstruierten Oberfläche variiert haben. Bei Abkühlung haben sich die Bereiche der (5×2) -Rekonstruktion auf Kosten der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche erweitert, während bei der folgenden Erhöhung der Temperatur die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche auf Kosten der (5×2) -rekonstruierten Bereiche gewachsen sind. Bei der Abkühlung der Oberfläche muss also Gold aus den $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen in die (5×2) -rekonstruierten Bereiche diffundiert sein. Dies lässt sich spekulativ so interpretieren, dass die bei Raumtemperatur in der Nähe von $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen mit STM aufgenommenen Bilder (5×2) -Bereiche mit höheren Goldanteil in Form von Spiegeldomänen zeigen, die sich bei Abkühlung aus ehemals $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen gebildet haben.

5.2.10 Rolle der Adatome im Beugungsbild

Wie in Abb. 5.9 zu sehen, dekoriert eine beträchtliche Anzahl von Siliziumadatomen die (5×2) -rekonstruierten Bereiche. Um zu untersuchen, welchen Einfluss die Adatome auf das Beugungsbild besitzen, wird das STM-Bild wie in Abb. 5.23 zu sehen analysiert. Dazu werden die Merkmale in 2-fach Richtung (siehe Abb. 5.10) bzw. die Adatome markiert und die Marker getrennt Fouriertransformiert.

Es ist deutlich zu sehen, dass die Unterlage allein für die markanten Streifen im Beugungsbild sorgt. Die einzige Rolle, die die Adatome hierbei spielen können ist die, dass sie zu Phasenverschiebungen führen, wofür bisher allerdings keine Anzeichen gefunden werden konnten. In der Fouriertransformierten für die Adatome fallen Streifen bei $1/4$ BZ auf. Dies entspricht genau dem häufigsten Abstand der Adatome von 4 Gitterkonstanten. Da diese Streifen im Beugungsbild (siehe Abb. 5.2) nicht erscheinen, müssen Adatome einen sehr geringen Rückstreufaktor aufweisen.

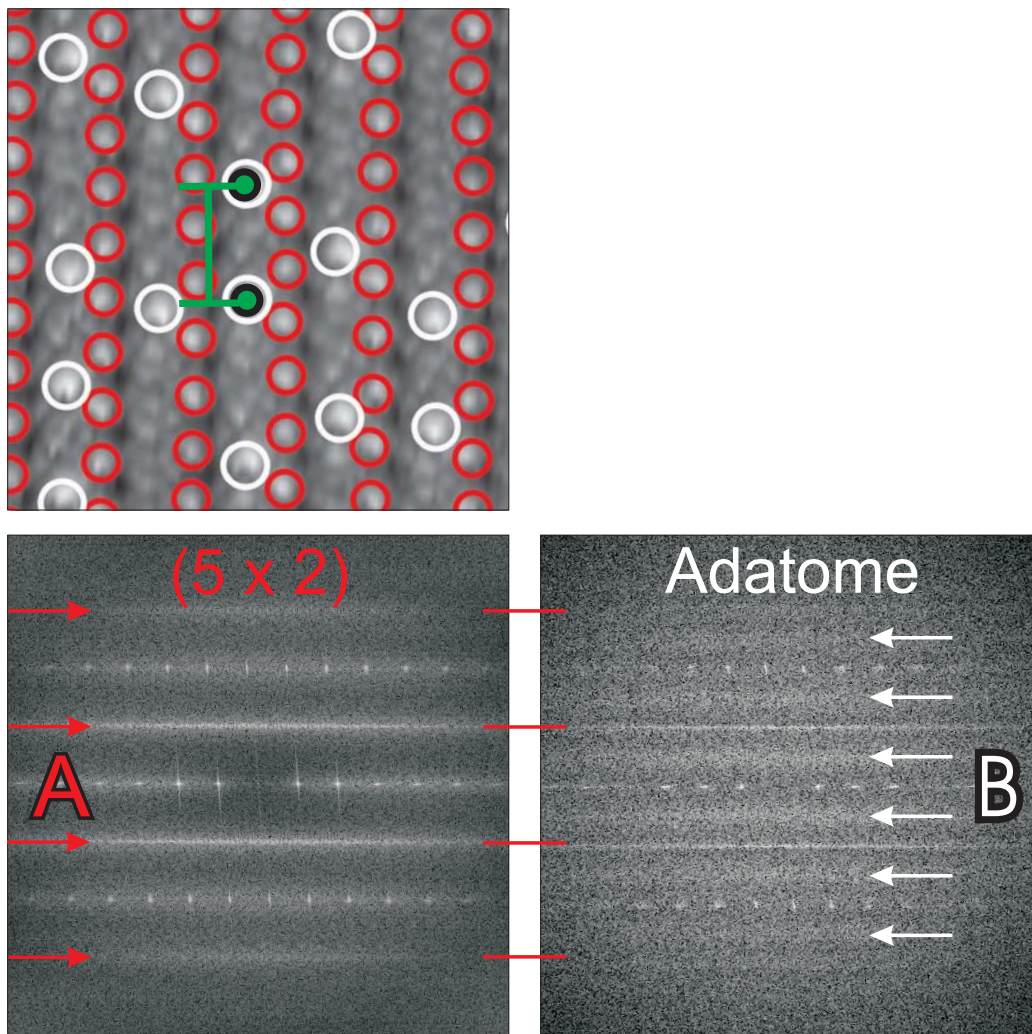


Abbildung 5.23: Über ein größeres Bild (Teilausschnitt oben links) sind Merkmale in 2-fach Richtung mit roten Kreisen, die Adatome mit weißen Kreisen markiert und getrennt Fouriertransformiert worden. Der häufigste Abstand der Adatome zueinander entlang der Reihe von 4 Gitterkonstanten ist mit einem grünen Strich markiert. Die Fouriertransformierte der Adatome ist aufgrund der geringeren Statistik weniger scharf ausgeprägt. Die Unterlage allein weist Phasenverschiebungen und somit Streifen auf halber BZ – Merkmale A – im Fourierbild auf. Diese Merkmale sind in der Fouriertransformierten für die Adatome ebenso enthalten, da Adatome auf festen Positionen innerhalb der Einheitszelle sitzen und die Phasenverschiebungen in der Unterlage mitnehmen. Die Fouriertransformierte der Adatome weist zusätzlich Streifen auf 1/4 BZ – Merkmale B – entlang der 5-fach Richtung auf, die im Beugungsbild nicht zu sehen sind (siehe Abb. 5.2, Seite 48). Die Verbreiterung dieser Streifen lässt sich auf seltenere Abstände zurückführen, die keine Vielfache von 4 Gitterkonstanten, sondern dazwischenliegende Abstände – z.B. 6 Gitterkonstanten, sind (siehe auch Abschnitt 5.2.11).

5.2.11 Analyse der Adatomkorrelationen in (5×2) -rekonstruierten Bereichen

Bekanntes zu Adatomkorrelationen

Wie in Abschnitt 5.2.8 ausgeführt, sind Siliziumadatome ein markantes Merkmal der (5×2) -Rekonstruktion, die die elektronische Struktur der Rekonstruktion wesentlich beeinflussen, wobei die Konzentration der Adatome der Literatur nach einen energetisch optimalen Wert besitzt [46][4][31], der allerdings lokal stark abweichen kann (siehe unten).

Erste Untersuchungen zur Korrelation der Adatome wurden von Yagi et al.[96] vorgestellt. Die Annahme von einem Gittergas mit einer repulsiven Kraft führte dabei zu einer erstaunlichen Korrelation zwischen STM Daten und Monte-Carlo Simulation - sofern Unregelmäßigkeiten in den Gitterpositionen eingebaut werden, über deren genaue Natur keine Vermutungen angestellt worden sind. Diese können spekulativ mit den Phasenverschiebungen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereichen in Verbindung gebracht werden.

Die folgenden Merkmale, die in STM-Bildern sichtbar sind, konnten in der Arbeit von Yagi et al.[96] reproduziert werden

- Es gibt eine fast nicht vorhandene Wahrscheinlichkeit, zwei Adatome in benachbarten Zellen zu finden.
- Die Korrelationsfunktion oszilliert, wobei für geradzahlige Abstände die Besetzungswahrscheinlichkeit erhöht ist.
- Die Besetzungswahrscheinlichkeit für ungeradzählige Abstände steigt mit dem Abstand an.
- Die Wechselwirkung zwischen Adatomen benachbarter Reihen ist schwach.

Die ansteigende Wahrscheinlichkeit für die Besetzung von Plätzen im ungeradzahligen Abstand in der Korrelationsfunktion kann mit den Phasenverschiebungen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche erklärt werden

(siehe Abb. 5.11).

Das bedeutet, dass innerhalb von Abschnitten zwischen Phasenverschiebungen die Adatome den geradzahligen Abstand durchaus streng beibehalten, aber über Phasenverschiebungen hinweg gezählt auf ungeradzähligen Abständen liegen.

Diese Interpretation wurde ebenso von Kirakosian et al.[45] angestellt, die sich ebenfalls mit der Korrelation der Adatome in STM-Bildern und der daraus folgenden Schlüsse über die der Verteilung zugrunde liegenden Energetik beschäftigt haben. Dabei wurde das Modell von Yagi et al.[96] um eine langreichweitige, oszillierende Wechselwirkung erweitert. Experimentell findet sich eine ansteigende Besetzung von Adatomplätzen mit ungeradzahligem Abstand, die bei Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase stark zunimmt. Während für eine gerade ausreichende Bedeckung wie bei Yagi et al. ein lineares Ansteigen für die Besetzung von ungeradzähligen Abständen und ein entsprechender Abfall für die geradzahligen Abstände mit steigendem Abstand gefunden wurde, ist dieses Verhalten bei Oberflächen mit Goldüberschuss stärker, eher exponentiell.

Dies steht nicht im Widerspruch mit der vorherigen Deutung, dass dies an Phasenverschiebungen liegt, da der Anteil der Phasenverschiebungen mit steigender Goldbedeckung zunimmt (siehe auch Abschnitt 5.2.5).

Auswertungsprogramm

Da die (5×2) -Rekonstruktion im Übergang zur $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ Rekonstruktion (siehe Abschnitt 5.2.7) im STM einen anderen Kontrast aufweist – zumindest eine leicht veränderte Adatomposition, als die (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase, liegt es nahe, die Korrelationen für beide Bedeckungsbereiche zu vergleichen.

Für eigene Auswertungen wurden bevorzugt Bilder ausgewertet, die am Ende einer Serie entstanden sind, um den unvermeidlichen Piezo-Creep zu reduzieren. Dies ist hauptsächlich notwendig, da eine sinnvolle Entzerrung der (5×2) -rekonstruierten Bereiche wegen der Phasenverschiebungen entlang der 2-fach Richtung nicht möglich ist. Als Hilfsmittel eine Referenzre-

konstruktion im selben STM-Bild zu nehmen funktioniert nur für die Koexistenz mit der (7×7) -Rekonstruktion, da die goldinduzierte $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ Domänenwände und damit auch Phasenverschiebungen aufweist.

Für die weitere Auswertung wurden alle Bildausschnitte so ausgerichtet, dass die 2-fach Richtung der (5×2) -rekonstruierten Bereiche für die weitere Auswertung mit Igor Pro[92] horizontal lagen.

Die gut sichtbaren Adatome wurden mit Hilfe der Partikelanalyse als (x,y)-Koordinaten erfasst. Zur Bestimmung der einzelnen Reihen wurden Histogramme der y-Positionen der Adatome erstellt. Die Spitzen im Histogramm stellen die Reihen dar, denen die einzelnen Adatome zugeordnet werden. Über die Anzahl der Reihen und die Position der obersten und der untersten Reihe kann das Bild in senkrechter Richtung kalibriert werden:

$$\frac{\text{Gitterkonstante}}{\text{Pixel}} = \frac{4,33 \cdot \text{Gitterkonstante} \cdot (N - 1)}{(P_{\text{oberste Reihe}} - P_{\text{unterste Reihe}})} \quad (5.1)$$

wobei N die Anzahl der Reihen und P die Y-Pixelposition der jeweiligen Reihen bezeichnet.

Zur Kalibrierung der horizontalen X-Richtung wird der häufigste Abstand von Adatomen von 4 Gitterkonstanten in 2-fach Richtung genommen[31] d.h. der häufigste Abstand in Pixeln von aufeinander folgenden Adatomen wird als 4 Gitterkonstanten des Si(111)-Substrats gewertet. Der Vergleich der beiden Kalibrierungen erlaubt eine Bewertung der Entzerrung der Bilder. Die für die Auswertung verwendeten Bilder hatten einen maximalen Unterschied der beiden Kalibrierungen von 10 %, typischerweise unter 5 %.

Um fälschlich ausgewertete Partikel zu eliminieren, werden die Partikel nach Zirkularität und Größe im Bild gefiltert. Es ist allerdings darauf zu achten, dass Adatome, die in benachbarten Zellen sitzen, niedriger erscheinen[31] und wegen der scheinbar geringeren Partikelgröße herausgefiltert werden können. Außerdem besitzen Adatome am Rand eine geringere Zirkularität, da sie teilweise abgeschnitten sind. Um die Qualität der Partikelanalyse und die Zuordnung der Adatome zu den einzelnen Reihen zu bewerten, wurden alle Partikel mit Kreisen unterschiedlicher Farbe markiert. Die Parameter sind für jedes Bild so lange variiert worden, bis alle Partikel korrekt identifiziert

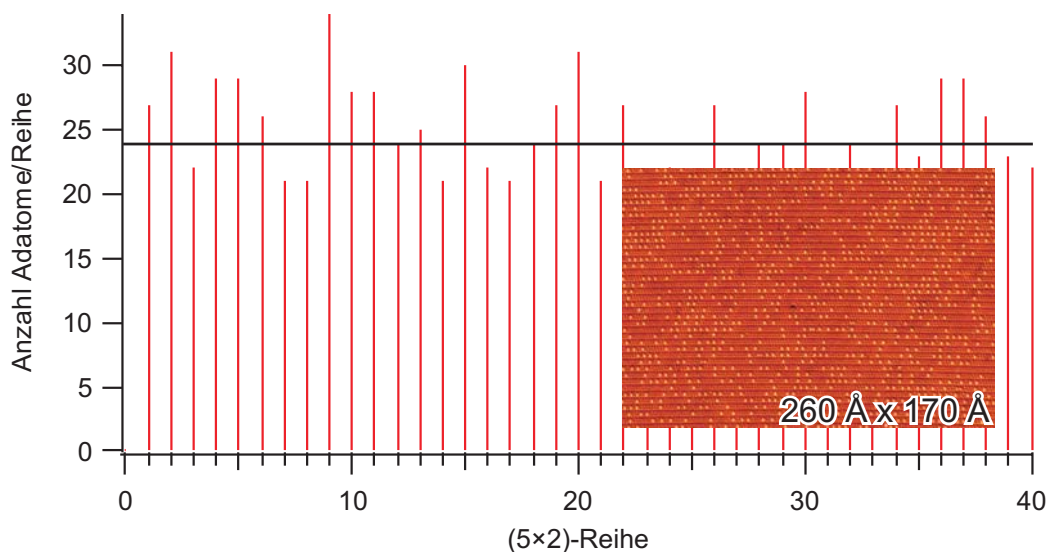


Abbildung 5.24: Aufgetragen ist die Anzahl Adatome/Reihe für eine Präparation bei 575 °C mit der (5×2) -Phase in Koexistenz mit $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase. Die mittlere Adatomzahl pro Reihe in diesem Ausschnitt ist 24 Adatome/Reihe (schwarze Horizontale). Das Inset zeigt das ausgewertete Bild.

waren.

Adatomhäufigkeiten pro Reihe

Eine wesentliche Aussage von Kirakosian et al.[45] ist, dass die Korrelation von Adatomen benachbarter Reihen, wenn vorhanden, sehr schwach ist. Eine einfache erste Analyse dazu ist, die Anzahl der Adatome pro Reihe auszuwerten (typisches Bild siehe Abb. 5.24). Es ist nicht überraschend, dass eine deutliche Korrelation benachbarter Reihen nicht zu erkennen ist. Sollten sich Adatome nicht nur entlang einer Reihe, sondern auch in benachbarten Reihen abstoßen, so würde das in dieser Darstellung nicht zu erkennen sein, da sich die Anzahl der Adatome über die Länge bzw. über die Reihen hinweg wegmitteln würde. Sollten attraktive Wechselwirkungen zwischen Adatomen über Reihen hinweg existieren, sollte sich dies in lokalen Ansammlungen von Adatomen bemerkbar machen, die in einer geeigneten Auswertung aufzufinden sein sollten.

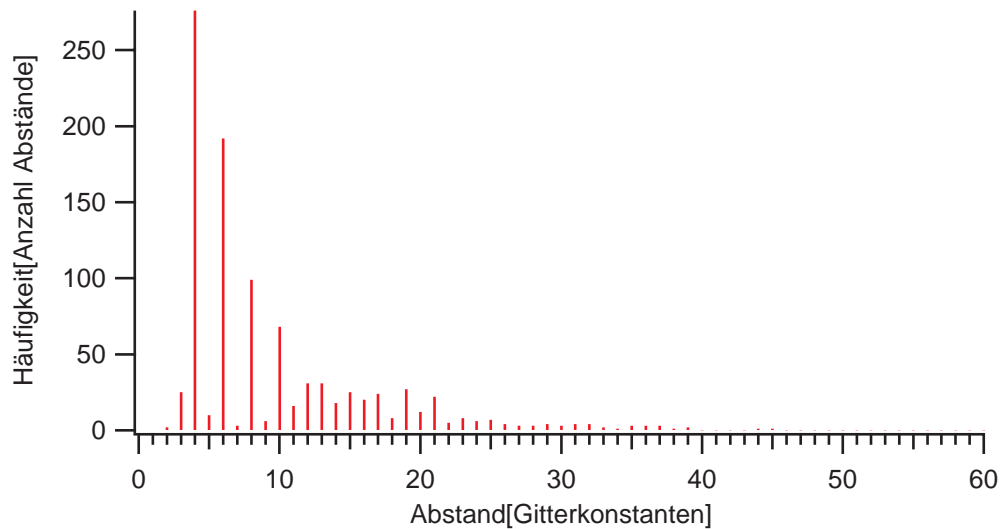


Abbildung 5.25: Exemplarisches Histogramm für die Häufigkeit bestimmter Abstände zwischen benachbarten Adatomen entlang der 2-fach Richtung. Dabei sind ganzzahlige vielfache einer Gitterkonstante möglich[31]. Der häufigste Abstand liegt bei 4 a. Die Wahrscheinlichkeit für Adatome in benachbarten Zellen – Abstand 2 Gitterkonstanten – ist stark unterdrückt. Im folgenden sind geradzahlige Abstände stark erhöht, was dafür spricht, dass die Adatome auf festen Positionen innerhalb der Einheitszelle sitzen. Zu höheren Abständen wird der Anteil der ungeradzahligen Abstände wegen der vorhandenen Phasenverschiebungen größer. Das scheinbar oszillatorische Verhalten der Abstände zu höheren Abständen hin sollte nicht überbewertet werden (siehe Abb. 5.37).

Korrelationen entlang der Reihen

Als erstes wurden zur einfachen Untersuchung der Wechselwirkung der Adatome untereinander Histogramme wie in Abb. 5.25 erstellt. Dargestellt ist die Häufigkeit der Abstände zu den nächsten Nachbarn. Der mit Abstand am häufigsten auftretende Abstand ist 4 Gitterkonstanten. Der Abstand ist per Definition exakt, da er wie oben beschrieben für die Kalibrierung der x-Richtung verwendet worden ist. Pro (5×2) -Einheitszelle kann es nur ein Adatom geben. Der Fall, dass ein Adatom in der benachbarten Zelle sitzt, ist stark unterdrückt – pro $500 \text{ Å} \times 500 \text{ Å}$ Ausschnitt gibt es typischerweise maximal 3 Adatompaaire in benachbarten Zellen (siehe auch Abb. 5.18). Die geradzahligen Abstände sind stark erhöht, wobei die Häufigkeit der Abstände

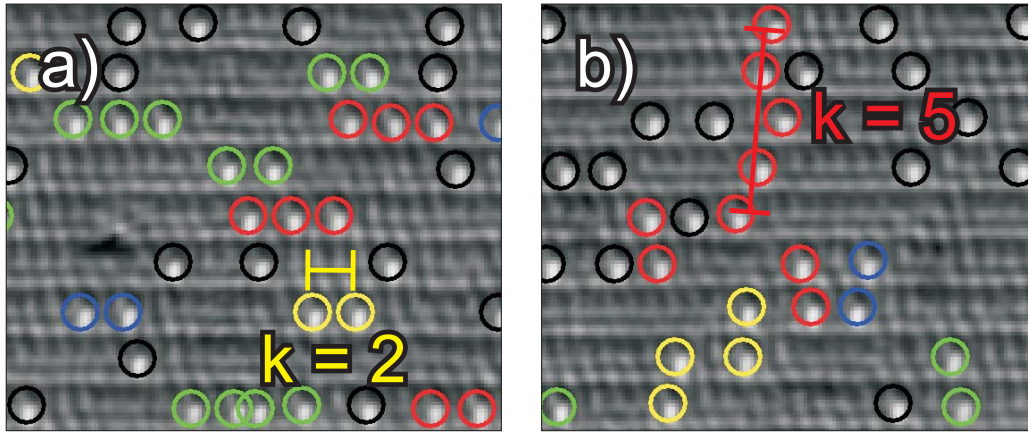


Abbildung 5.26: a) Adatome können sich zu Ketten in einem minimalen Abstand von 4 Gitterkonstanten zueinander in 2-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion anordnen – Adatome in einer Kette sind jeweils in einer Farbe markiert, einzelne Adatome entsprechend einer Kettenlänge von 1 sind schwarz markiert. Wie unten im Bild zu sehen, erscheinen in der Auswertung Atome in benachbarten Zellen als Teil einer Kette. Dieser Fehler ist in der Gesamtauswertung allerdings wegen des geringen Anteils der Adatome in benachbarten Zellen zu vernachlässigen.

b) Um eine mögliche attraktive Wechselwirkung der Adatome quer zur 2-fach Richtung in benachbarten Reihen zu untersuchen werden Ketten von Adatomen untersucht, die sich in der folgenden Reihe in einem maximalen Abstand d befinden. Ketten sind wie im Testbild b) zu sehen jeweils zusammenhängend farbig markiert.

Die Kettenlänge k ist für jeweils ein Beispiel eingezeichnet.

de exponentiell abfällt. Die ungeradzähligen Abstände nehmen mit größerem Abstand zu. Dies liegt an der Existenz von Phasenverschiebungen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche, die einen Versatz um eine Gitterkonstante bewirken (siehe Abb. 5.11).

Kettenbildung

Der häufigste Abstand von 4 Gitterkonstanten führt zur Bildung von Ketten von Adatomen in diesem Abstand zueinander, wie in Abb. 5.26 a) farbig markiert. Interessant ist, ob die Anordnung in Ketten rein zufällig ist, oder von einem elektronischen Effekt verursacht wird. Um dies zu untersuchen, muss eine adäquate diskrete Zufallsverteilung zum Vergleich gefunden werden (siehe auch [88] für eine Einführung).

Wenn p die Wahrscheinlichkeit ist, dass ein Adatom auf einer Gitterzelle des Substrats sitzt, dann ist $p' = \underbrace{5 \cdot 2 \cdot 2}_{\text{Bereich zweier Zellen}} \cdot p$ die Wahrscheinlichkeit, ein Adatom im Abstand von 4 Gitterkonstanten zu finden. Die Möglichkeit, ein Adatom im Abstand von 2 Gitterkonstanten in einer benachbarten Zelle zu finden wird hier unterschlagen, da sie im Experiment zu vernachlässigen ist. Sitzen im Bildausschnitt n Adatome, dann ist die zu erwartende Anzahl von einzelnen Adatomen $n - n \cdot p' = n(1 - p')$, da ein Anteil von $n \cdot p'$ Adatomen mindestens einen Nachbarn haben. Von den $n \cdot p'$ Adatomen in 2er Ketten besitzen $p'n(1 - p')$ einen dritten Nachbarn. Verallgemeinert sitzen

$$np'^{k-1}(1 - p') \quad (5.2)$$

Adatome in einer Kette der Länge k , bei einer Gesamtanzahl von n Adatomen.

Diese Gleichung kann verifiziert werden, indem die Anzahl aller Adatome für Ketten aller Längen addiert werden – das Ergebnis muss n sein:

$$\begin{aligned} \sum_1^{\infty} np'^{k-1}(1 - p') &= n(1 - p') \sum_1^{\infty} p'^{k-1} \\ &= n(1 - p') \sum_0^{\infty} p'^k \\ &= n(1 - p') \frac{1}{1 - p'} \\ &= n \\ &\quad q.e.d. \end{aligned}$$

Die Art der Herleitung der Gleichung erweckt den Eindruck, dass es sich bei der Wahrscheinlichkeit für Ketten bestimmter Länge um eine bedingte Wahrscheinlichkeit handelt. Bei genauerer Betrachtung handelt es sich bei der Gleichung fast um eine geometrische Wahrscheinlichkeitsverteilung – $p^k \cdot (1 - p)$ – dafür, k Adatome hintereinander zu finden mit einer unabhängigen Wahrscheinlichkeit p' für das Einsetzen eines Adatoms k mal hintereinander und der Wahrscheinlichkeit $(1 - p')$ an der Stelle $k + 1$ kein Adatom zu finden. Der Unterschied ist ein Faktor p' , da es egal ist, wo eine Kette mit

dem ersten Adatom mit der Wahrscheinlichkeit p' anfängt.

Eine Formulierung als binomische Zufallsverteilung bzw. als Poissonverteilung ist nicht adäquat, da in diesen Verteilungen nicht ermittelt wird, wie oft es vorkommt, dass ein Wurf hintereinander erfolgreich ist.

Das obige Modell erscheint auf den ersten Blick stark vereinfacht, da es impliziert, dass die Reihen quasi sequentiell mit Adatomen gefüllt werden. Wie von Hasegawa et al.[32] gezeigt, diffundieren Adatome auf Plätzen in 2 Gitterkonstanten Abstand d.h. von Einheitszelle der (5×2) zur nächsten bei erhöhten Temperaturen. Dies kann als eindimensionales Gittergas gedeutet werden[45], das beim Abkühlen auf Raumtemperatur wieder kondensiert. Da Adatome im Realraumbild feste Adsorptionsplätze innerhalb der (5×2) -Einheitszelle besitzen, ist es nicht abwegig anzunehmen, dass Adatome sich als Ketten fortbewegen, d.h. dass Adatome zwar zueinander den Abstand verändern, aber nicht ihre Plätze tauschen können. Sobald ein Adatom auf der (5×2) -Unterlage kondensiert, ist durch die repulsive Wechselwirkung[45] der Adatome der Abstand bis auf wenige Ausnahmen auf minimal 4 Gitterkonstanten für weitere Adatome festgelegt. Da weder im Beugungsbild noch im STM-Bild eine Modulation von 4 Gitterkonstanten in 2-fach Richtung in der (5×2) Unterlage zu erkennen ist, ist nicht davon auszugehen, dass besondere Adsorptionsplätze für Adatome im Abstand von 4 Gitterkonstanten über eine komplette (5×2) -Domäne, geschweige denn für eine komplette (5×2) -rekonstruierte Reihe existieren.

Kettenanalyse

Wie in Abb. 5.28 zu sehen, beschreibt eine Verteilung mit statistisch unabhängigen Ereignissen sehr gut die Verteilung der Adatome in Ketten verschiedener Länge. Die Besetzung der einzelnen Adsorptionsplätze mit Adatomen ist statistisch unabhängig. Bei höheren Kettenlängen führt Gl. 5.2 zwangsläufig zu einem vergleichsweise großen Fehler, da die Formel nicht integrale Werte bzw. Werte kleiner der eigentlich Kettenlänge erlaubt. Experimentell können nur ganze Ketten von Adatomen gefunden werden.

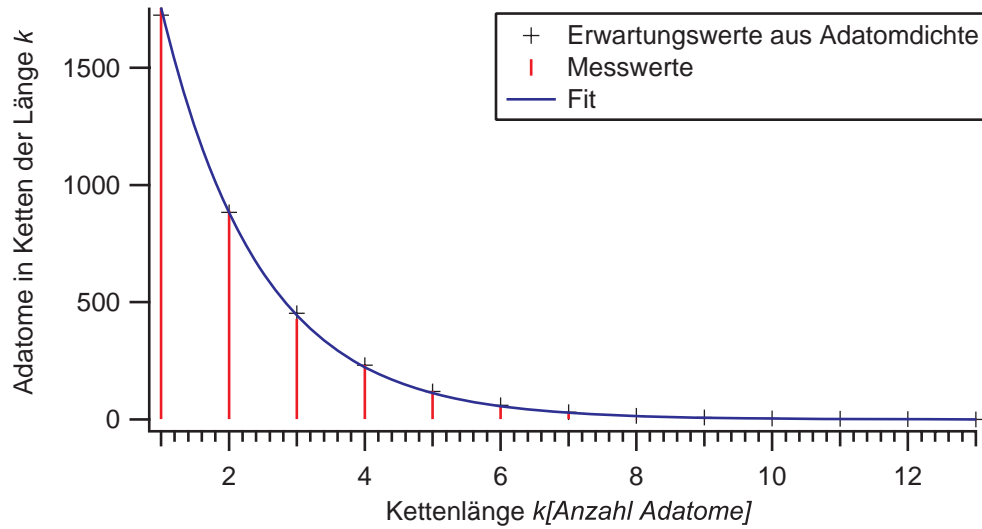


Abbildung 5.27: Aufgetragen ist die Anzahl der Adatome in Ketten der Länge k in 2-fach Richtung als Balkendiagramm (siehe Abb. 5.26 a)). Hierfür ausgewertet wurde ein STM-Bild eines (5×2) -rekonstruierten Bereichs in Koexistenz mit der (7×7) -Phase. Experimentell wurde aus der Dichte der Adatome eine Häufigkeit p' von 0,51 Adatomen pro $2 \times (5 \times 2)$ Einheitszellen ermittelt und die daraus zu erwartende Verteilung mit Kreuzen markiert. Aus einem Fit nach Gl. 5.2 (durchgezogene Linie) wurde eine im Rahmen des Kalibrierungsfehler identische Wahrscheinlichkeit von $0,503 \pm 0,002$ ermittelt.

Kettenanalysefehler

Dazu sollte der Fehler betrachtet werden, der durch die endliche Größe des ausgewerteten Bildausschnitts gemacht wird. Diese Begrenzung bevorzugt kurze Kettenlängen, da die Wahrscheinlichkeit, dass eine Kette am Rand des Bildes abgeschnitten wird, mit der Länge der Kette steigt. Dies hat den doppelten Effekt, dass sich die Anzahl der Ketten kürzerer Längen erhöht und die höherer Ketten erniedrigt. Eine Kette der Länge k benötigt einen Platz von $k \cdot 4 \cdot a$ in 2-fach Richtung. Wird eine Kette der Länge k am Anfang bzw. Ende einer Reihe in einem kleineren Bereich platziert, so wird die Kette abgeschnitten. Sitzt also eine Adatomkette beliebiger Länge am Ende einer Reihe am linken oder am rechten Rand, so lässt sich keine verlässliche Aussage treffen, wie lang die zugehörige Kette wirklich ist.

Es liegt nahe, dieses Problem zu umgehen, indem periodische Randbedin-

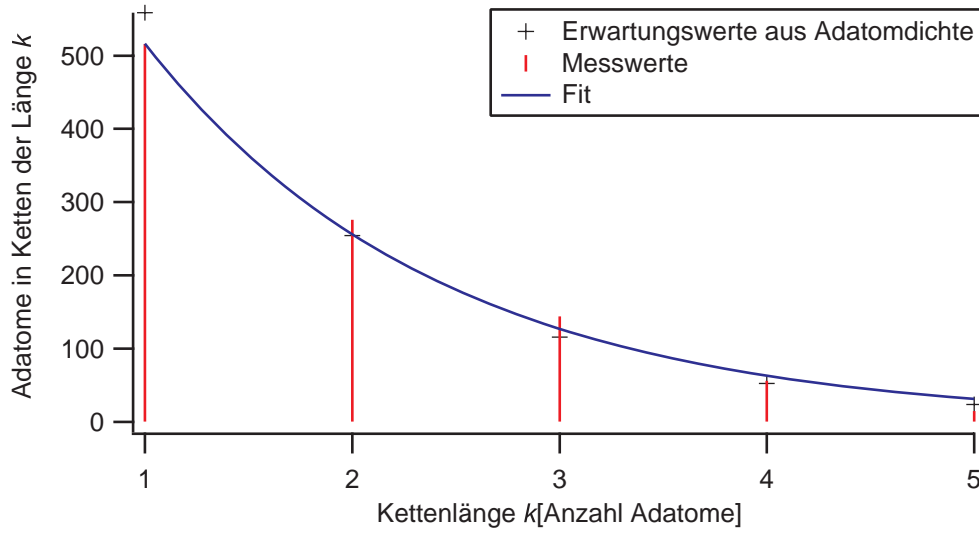


Abbildung 5.28: Aufgetragen ist die Anzahl der Adatome in Ketten der Länge k in 2-fach Richtung als Balkendiagramm (siehe Abb. 5.26 a)). Hierfür ausgewertet wurde ein STM-Bild eines (5×2) -rekonstruierten Bereichs in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase. Experimentell wurde aus der Dichte der Adatome eine Häufigkeit p' von 0,455 Adatomen pro $2 \times (5 \times 2)$ Einheitszellen ermittelt und die daraus zu erwartende Verteilung mit Kreuzen markiert. Aus einem Fit nach Gl. 5.2 (durchgezogene Linie) wurde eine erhöhte Wahrscheinlichkeit von $0,496 \pm 0,014$ ermittelt.

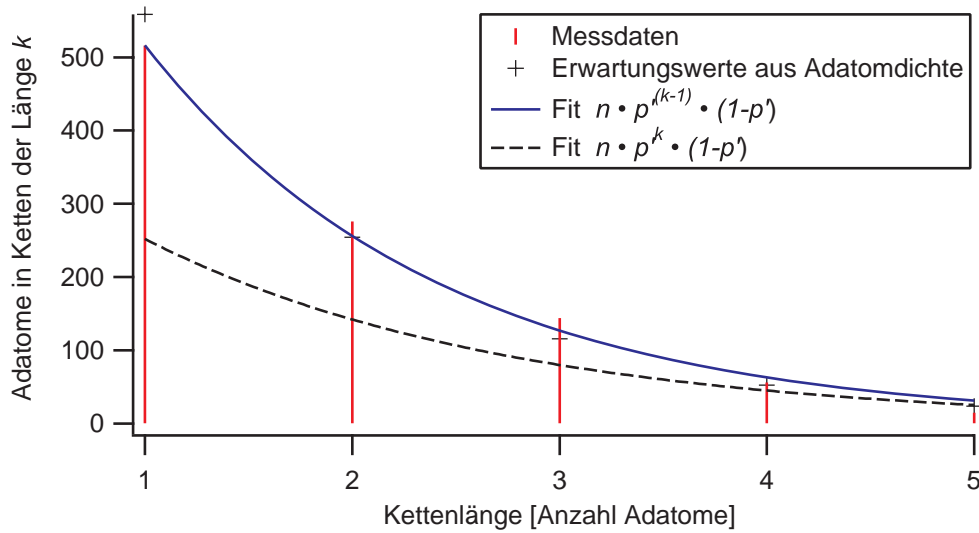


Abbildung 5.29: Die Gleichung $n \cdot p'^{(k-1)} \cdot (1-p')$ (siehe Text) wird verglichen mit der rein geometrischen Verteilung von $n \cdot p^k \cdot (1-p)$. Wie zu sehen, reproduziert die erste Gleichung sehr viel besser das experimentelle Ergebnis (siehe auch Abb. 5.28).

gungen angenommen werden, also Ketten am linken und am rechten Rand zusammengefügt werden. Ist das Bild allerdings hinlänglich klein – es kann nur ein Adatom im Bild pro Zeile vorhanden sein – führt dies zu einem absurden Ergebnis. Es existieren keine Ketten der Länge 1 und es fragt sich, ob ein Adatom in einer Reihe als Adatom in einer Kette der Länge 2, 3 oder beliebig langen Kette gesehen werden soll. Periodische Randbedingungen führen also wenigstens im Extremfall zu einer Überbewertung von längeren Ketten und einer Unterbewertung von kurzen Ketten.

Alternativ lässt sich überlegen, ob nicht einfach alle Ketten am Rand abgeschnitten werden sollen. Dies führt allerdings ebenso zu einer Ungleichbehandlung. Werden n Adatome durch die Maßnahme entfernt, so ist die Wahrscheinlichkeit, dass es sich um ein Adatom einer kurzen Kette handelt stark erhöht – die Wahrscheinlichkeit geht wie oben angegeben nach der Wahrscheinlichkeit $p^{(k-1)} \cdot (1 - p)$.

Da wie in Abb. 5.27 zu sehen die erwarteten Werte sehr gut mit den Messwerten übereinstimmen, wird auf eine Fehlerrechnung für lange Ketten im folgenden verzichtet. Erhöhte Werte für kurze Kettenlängen sollten allerdings mit besonderer Vorsicht betrachtet werden.

Wie in Abb. 5.28 zu sehen, ergibt der Fit eine höhere Besetzungswahrscheinlichkeit für einzelne Adatome. Dazu sollte der Fehler betrachtet werden, der durch die Vernachlässigung der Phasenverschiebungen im Bild erzeugt wird. Wie oben in Abschnitt 5.2.8 erläutert, sitzen die Siliziumadatome der (5×2) -rekonstruierten Bereiche nicht auf Abschnitten, die Phasenverschiebungen einführen. Um Phasenverschiebungen in einem Bild zu finden, werden die Positionen der Adatome als Marker verwendet. Ist der Abstand zwischen zwei Adatomen in 2-fach Richtung ungerade, d.h. nicht $2 \cdot n \cdot a$, so wird dies als Phasenverschiebung gewertet. Den Fehler, den das Auswerteprogramm dabei zusätzlich zu einer falschen x-Kalibrierung machen kann, ist der, dass die Partikelanalyse die Position eines Adatoms nicht genau bestimmt und Phasenverschiebungen auf beiden Seiten eines Adatoms gefunden werden, das eigentlich einen geradzahligen Abstand zu seinen Nachbarn aufweist.

Wenn n die Anzahl der Adatome in einem Bild sei und A die Gesamtfläche des Bildes, dann ist die Wahrscheinlichkeit $p = \frac{n}{A}$, ein Adatom in einem

Gebiet zu finden. Im ausgewerteten STM-Bild zu Abb. 5.28 ist $n = 1005$, $A = 45000a^2$ und $p = 0,0233\frac{1}{a^2}$. Von der Fläche A ist bei Berücksichtigung der Phasenverschiebungen ein Flächenanteil von $5 \times 3a^2$ pro Phasenverschiebung abzuziehen. Die Breite der Phasenverschiebung wird hier aus zweierlei Gründen als $3a$ angenommen. Der erste Grund ist der, dass im Bereich einer Phasenverschiebung das markante Merkmal der 2-fach Richtung verschwindet, also sich die Modifikation der (5×2) -Rekonstruktion nicht nur auf den Bereich einer Gitterkonstante konzentriert. Der zweite Grund ist der, dass ein Adatom eine komplette Einheitszelle der (5×2) -Rekonstruktion besetzen muss, also auch beeinflusst wird, wenn nur ein Teil der (5×2) -Zelle modifiziert wird. Wenn $s = 197$ die Anzahl der Phasenverschiebungen im STM-Bild zu Abb. 5.28, ermittelt aus der Anzahl der ungeradzahlgigen Abstände, ist, so ergibt sich eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für das Auffinden eines Adatoms von $p' = \frac{n}{A-15a^2 \cdot s} = \frac{1005}{45000a^2-15a^2 \cdot 197} = 0,478\frac{1}{a^2}$.

Bei der Auswertung von Bereichen in der Nähe von $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen – siehe Abb. 5.20 – ist mit einer erhöhten Wahrscheinlichkeit p' für Adatomketten zu rechnen, da ein Anteil der möglichen Adsorptionsplätze durch Goldadatomatome (siehe Abschnitt 5.2.9, Seite 74) bzw. Spiegeldomänen entfällt. Eine genaue Auswertung dieses Anteils ist mit dem Auswertetool kaum möglich, da sich die Goldadatomatome kaum von der (5×2) -Unterlage abheben. Wird die aus Abb. 5.20 abgeschätzte Bedeckung von $0,007$ ML genommen, so entfallen in dieser Beispielrechnung $45000a^2 \cdot 0,007 \cdot 5 \cdot 2 = 3150a^2$ als Adsorptionsfläche. Die Goldadatomatome können also einen ähnlich großen Effekt auf die Wahrscheinlichkeit p' wie die Phasenverschiebungen haben. Beide Effekte könnten der Grund für die leichte Erhöhung der Kettenlängen in Abb. 5.28 für Kettenlänge 2 und 3 sein, da die Wahrscheinlichkeit, dass eine Kette durchbrochen wird, mit größerer Länge steigt.

Des weiteren kann die aus der Dichte der Adatome bestimmte Wahrscheinlichkeit p' durch Randeffekte niedriger ausfallen, d.h. der Randbereich kann so liegen, dass nur Bereiche ohne Adsorptionsplätze in diesem Bereich liegen. Auch dies führt je nach Bildgröße zu einer leicht unterbewerteten Wahrscheinlichkeit p' , ein Adatom zu finden.

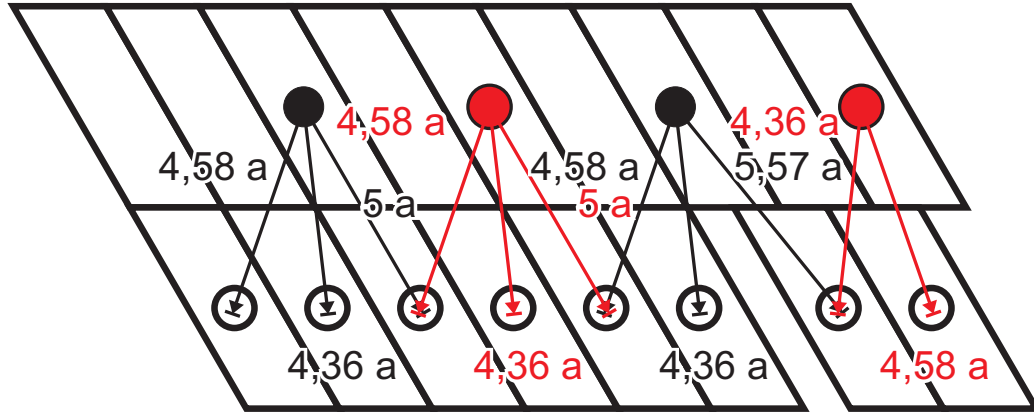


Abbildung 5.30: Weitergehende Erläuterung zur Auswertung der Kettenbildung quer zu den Reihen (siehe auch Abb. 5.26). Für Adatome in der obersten Reihe – minimaler Abstand von 4 a, entsprechend zweier (5×2) -Zellen – ist die Anzahl der möglichen Adatomadsorptionsplätze in benachbarten Reihen mit weißen Kreisen dargestellt. Dabei sind drei Situation von links nach rechts dargestellt: zwei Adatome direkt benachbart, benachbarte Reihe nicht phasenverschoben; benachbarte Reihe um eine Gitterkonstante verschoben – einmal vor dem Adatom bzw. nach dem Adatom in der obersten Reihe.

Ein Kreis mit dem Radius von $4,65 \text{ \AA}$ fasst also zwei mögliche Adatomplätze in der unteren Reihe ein.

Ketten über benachbarte Reihen

Um eine mögliche attraktive Wechselwirkung der Adatome in benachbarten Reihen zu untersuchen, wurde die Kettenbildung quer zu den Reihen untersucht. Dabei werden all Adatome als Teil einer Kette gewertet, die sich in einem Abstand von höchstens $4,65$ Gitterkonstanten zueinander in einer anderen Reihe befinden (siehe Abb. 5.26 b und Abb. 5.30 für eine Erläuterung der Länge $4,65$ Gitterkonstanten)). Wie in Abb. 5.30 zu sehen, gibt es für einen Abstand von $4,58$ Gitterkonstanten bei allen möglichen Konfigurationen genau zwei Adsorptionsplätze in der folgenden Reihe, ohne dass sich die Ketten für zwei Adatome in der oberen Reihe überschneiden. Auch für diese Ketten wird zum Vergleich eine geometrische Verteilung mit demselben Parameter p' dargestellt (siehe Abb. 5.32). Die Ketten der Länge 2 und 3 sind bei einer deutlich erhöhten Wahrscheinlichkeit von $p = 0,54$ für eine Verteilung nach Gl. 5.2 leicht überrepräsentiert. Dies entspricht den Ergebnissen von Yagi et al.[96], die eine – wenn auch sehr schwache – Korrelation

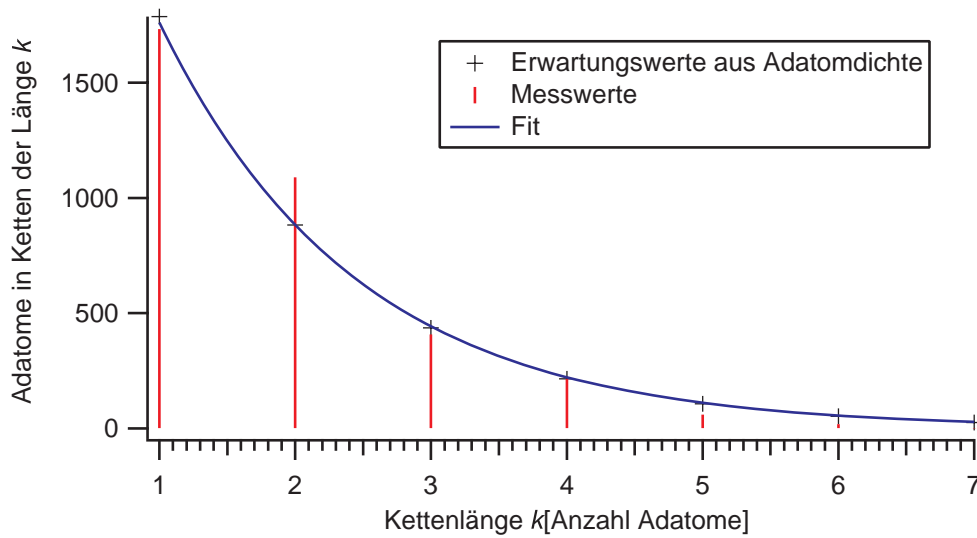


Abbildung 5.31: Aufgetragen ist die Anzahl der Adatome in Ketten über benachbarte Reihen (siehe auch Abb. 5.26 b) bzw. Abb. 5.30) für (5×2) -rekonstruierte Bereiche in Koexistenz mit der (7×7) -Phase. Die Messwerte sind als Linien dargestellt, die mit der aus der Adatomdichte errechneten Wahrscheinlichkeit p' zu erwartende Verteilung ist mit Kreuzen markiert. Der Kurvenfit mit $p' = 0,501 \pm 0,02$ für die Verteilung aus Gl. 5.2 ist als durchgezogene Linie dargestellt.

der Adatome in benachbarten Reihen gefunden haben. Die Erhöhung der Anzahl kurzer Ketten sollte nicht überbewertet werden, da das Problem der begrenzten Bildgröße (siehe oben) für die y-Richtung sehr viel stärker als für die x-Richtung zum tragen kommt.

Vergleich mit weiteren Zufallsverteilungen

Interessant für die Korrelationen wäre hier ein Vergleich mit einer anders aufgebauten Wahrscheinlichkeitsverteilung, die eher der Adsorption und weiteren Diffusion der Adatome auf der Oberfläche entspricht. An dieser Stelle sollte allerdings betont werden, dass es sich bei den Adatomen um Material des Substrats und nicht um ein Adsorbat handelt.

Für eine Simulation wird ein festes Gitter der experimentell gefundenen Größe erzeugt, wobei die Adsorptionsplätze im Abstand von 2 Gitterkonstanten angeordnet sind. Die Adatome werden dann zufällig der Reihe nach im Gitter platziert. Sind der gewählte oder die benachbarten beiden Adsorptionsplätze

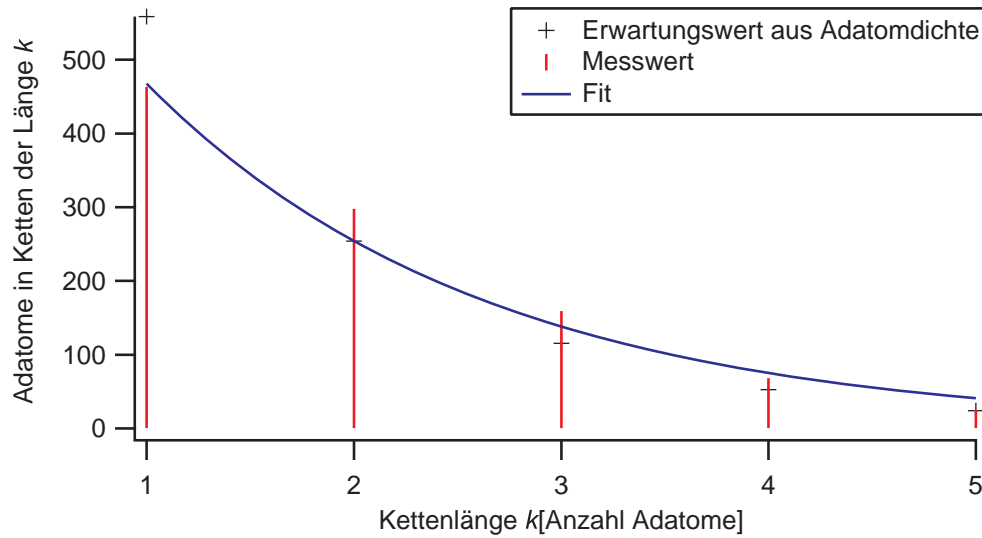


Abbildung 5.32: Aufgetragen ist die Anzahl der Adatome in Ketten über benachbarte Reihen (siehe auch Abb. 5.26 b) bzw. Abb. 5.30) für (5×2) -rekonstruierte Bereiche in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase. Die Messwerte sind als Linien dargestellt, die mit der aus der Adatomdichte errechneten Wahrscheinlichkeit p' zu erwartende Verteilung ist mit Kreuzen markiert. Der Kurvenfit mit $p' = 0,543 \pm 0,025$ für die Verteilung aus Gl. 5.2 ist als durchgezogene Linie dargestellt.

schon mit einem Adatom besetzt, so gibt es zwei einfache Varianten. In der einen Variante, wird einfach der Adsorptionsplatz zufällig neu ermittelt, in der zweiten Variante wandert das Adatom in eine zufällige Richtung, bis es einen freien Adsorptionsplatz gefunden hat.

Es gibt keine analytische Lösung des Problems, n Adatome zufällig auf a Adsorptionsplätze zu verteilen und eine Wahrscheinlichkeit dafür zu ermitteln, dass sich Adatome zufällig in Ketten der Länge k befinden. Der Hauptgrund dafür ist, dass sich zwei Adatome weder denselben, noch einen benachbarten Adsorptionsplatz teilen dürfen.

Das ähnlich gelagerte Geburtstagsproblem ist wesentlich einfacher. Dabei wird typischerweise angegeben, wie viele Personen sich in einer Menge befinden müssen, damit die Wahrscheinlichkeit, dass zwei Personen an irgendeinem Tag zusammen Geburtstag haben mindestens die Größe $0 \leq p \leq 1$ beträgt. Die Wahrscheinlichkeit für eine Person, Geburtstag zu haben, be-

trägt dabei $1/365$ für jeden einzelnen Tag. Damit sich keine Geburtstage überschneiden, bleibt für jedes weiteres Geburtstagskind einer Gruppe von Personen ein Tag weniger im Kalender zum Eintragen zur Verfügung. Für die erste Person bleiben 365 Tage, für die zweite 364 Tage, für die dritte Person 363 Tage usw..

Wird dieser Ansatz auf das Problem mit den Adatomen übertragen, dann ist die Wahrscheinlichkeit gesucht, dass sich Adatome nicht in Ketten mit Länge größer 1 Adatom befinden. Das erste Adatom besitzt so viele mögliche Adsorptionsstellen, wie es Adsorptionsplätze a gibt. Durch die Platzierung des Adatoms entfallen ebenso die beiden direkt benachbarten Adsorptionsplätze in 2 Gitterkonstanten Abstand zu beiden Seiten. Da hier der Fall untersucht wird, dass sich Adatome nur in Ketten der Länge 1 befinden, müssen auch die beiden weiteren Adsorptionsplätze in 4 Gitterkonstanten Abstand zu beiden Seiten im weiteren unbesetzt bleiben, so dass insgesamt nur noch $a-5$ Plätze für das zweite Adatom zur Verfügung stehen. Für alle weiteren Adatome wird das Problem unübersichtlich, da die Oberfläche nun ähnlich wie ein Computerspeicher bei längerer Benutzung fragmentiert, d.h. es treten Lücken zwischen Adatomen auf, die kleiner als die fünf benötigten Plätze für das Hinzufügen eines neuen Adatoms sind. Diese kleinen Bereiche sind dann für die Besetzung mit weiteren Adatomen verloren.

Also ist wie oben angedeutet selbst für einfache Fälle eine analytische Lösung für die Wahrscheinlichkeit einer Kette der Länge k bei rein zufälliger Verteilung der Adatome auf freie Plätze nicht möglich.

Paarkorrelation entlang einer Reihe

Diese Auswertung entspricht der Auswertung von Kirakosian et al.[45]. Dabei wird ein Histogramm aller Abstände von Adatomen zueinander entlang einer Reihe in 2-fach Richtung der (5×2) Rekonstruktion gemacht und für die Normierung durch die Anzahl der Adatome zum Quadrat geteilt: $g(k) = N_{(5 \times 2)\text{-Zellen}} \cdot \frac{\sum d_k}{N_{\text{Adatome}}^2}$. Um den Fehler einer zu ungenauen Kalibrierung – für diese Auswertung ist eine Genauigkeit von etwa 1 % erforderlich – zu minimieren, wurden nicht die absoluten Abstände zwischen zwei

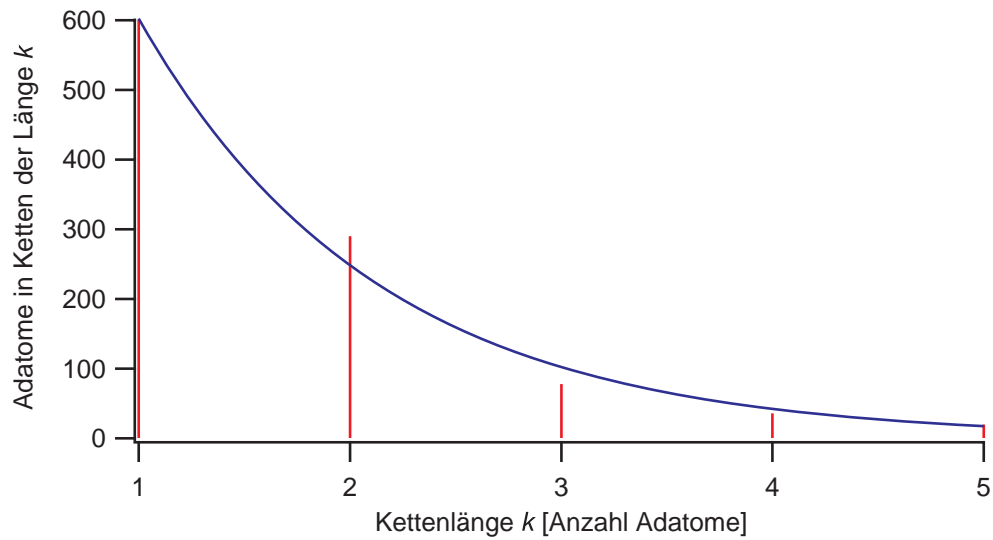


Abbildung 5.33: Aufgetragen ist die Anzahl von Adatomen in Ketten der Länge k in 2-fach Richtung für eine Zufallsverteilung. In diesem Beispiel wurde dieselbe Anzahl von Adatomen wie im exemplarisch verwendeten Bild (siehe auch Abb. 5.28) zufällig mit einer gleichmäßigen Wahrscheinlichkeitsverteilung Adsorptionsplätzen in minimal 4 Gitterkonstanten Abstand zugeordnet. Die Position der Reihen wurde dem verwendeten Bild entnommen, die Anzahl der Adsorptionsplätze aus der Breite des Bildes errechnet. Ist eine zufällig ermittelte Position nicht besetzbar, wird noch einmal gewürfelt. Die durchgezogene Kurve entspricht dem Fit mit Gl. 5.2.

Adatomen ins Histogramm übernommen, sondern die Abstände zwischen allen Adatomen entlang der Strecke. Implizit wird dabei die experimentelle Beobachtung verwendet, dass alle Adatome ganzzahlige Gitterabstände zueinander aufweisen, so dass alle Abstände auf eine Gitterkonstante gerundet werden können. Mit der Summierung der gerundeten Adatomabstände zwischen zwei weiter entfernt liegenden Adatomen wird der Kalibrierungsfehler bei jeder Abstandsbildung eliminiert⁵. Auf periodische Randbedingungen zur Reduzierung der Fehler für längere Abstände wurde verzichtet, da der Fehler in der Anzahl der Abstände nur wenige Prozent beträgt. Außerdem führen periodische Randbedingungen unter Umständen zu künstlichen Phasenverschiebungen im Bild, da Bilder nicht genau am Rand einer Zelle abgeschnitten werden. Dies führt neben der Erhöhung von ungeradzahligem Abständen

⁵Ist die Kalibrierung ungenügend, so führt das im Diagramm zu einer schwebungsähnlichen Oszillation.

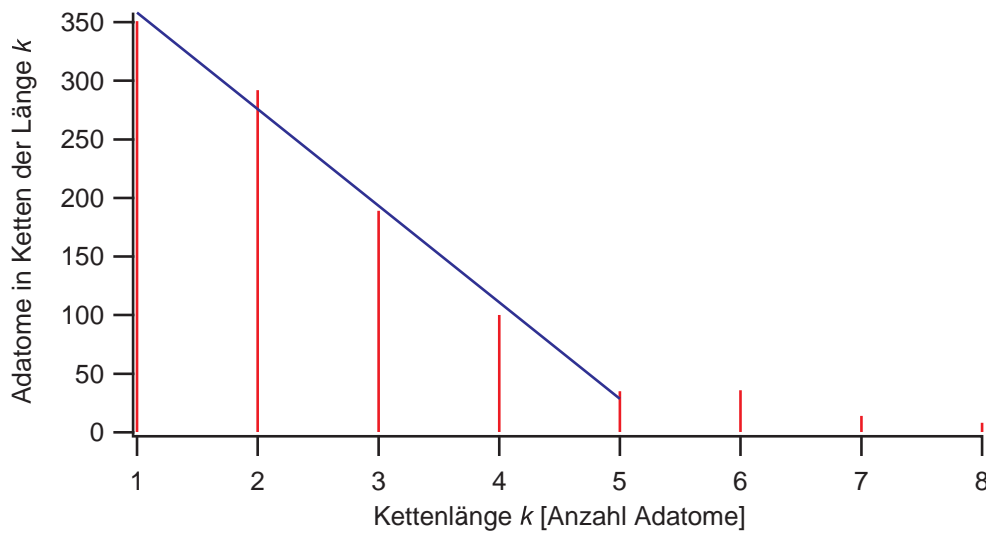


Abbildung 5.34: Aufgetragen ist die Anzahl von Adatomen in Ketten der Länge k in 2-fach Richtung für eine Zufallsverteilung. In diesem Beispiel wurde dieselbe Anzahl von Adatomen wie im exemplarisch verwendeten Bild (siehe auch Abb. 5.28) zufällig mit einer gleichmäßigen Wahrscheinlichkeitsverteilung Adsorptionsplätzen in 4 Gitterkonstanten Abstand zugeordnet. Die Position der Reihen wurde dem verwendeten Bild entnommen, die Anzahl der Adsorptionsplätze aus der Breite des Bildes errechnet. Ist eine zufällig ermittelte Position nicht besetzbar, so wandert das neue Adatom zufällig nach links oder rechts, bis es auf einen besetzbaren Platz trifft. Dies führt zu einer stark erhöhten Wahrscheinlichkeit von längeren Ketten, wobei die Anzahl der Adatome in einer Kette linear mit der Länge abfällt (siehe linearen Fit für Kettenlänge 1 bis 5).

auch zu Erhöhung der Abstände, die nicht einem vielfachen von vier Gitterkonstanten entspricht.

Wie in beiden präsentierten Diagrammen zu sehen (Abb. 5.35, Abb. 5.36), sind geradzahlig Abstände deutlich überrepräsentiert. Der häufigste Abstand zwischen zwei Adatomen ist wie gehabt vier Gitterkonstanten. Geringere Abstände sind deutlich unterdrückt. Ungeradzählige Abstände sind seltener und nehmen mit steigender Entfernung zu, da mit steigender Entfernung die Wahrscheinlichkeit zunimmt, dass eine Phasenverschiebung eine Verschiebung um eine Gitterkonstante einführt. Der deutliche Unterschied zwischen der (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase (Abb. 5.35) ist die geringere Dichte von Phasenverschiebungen im

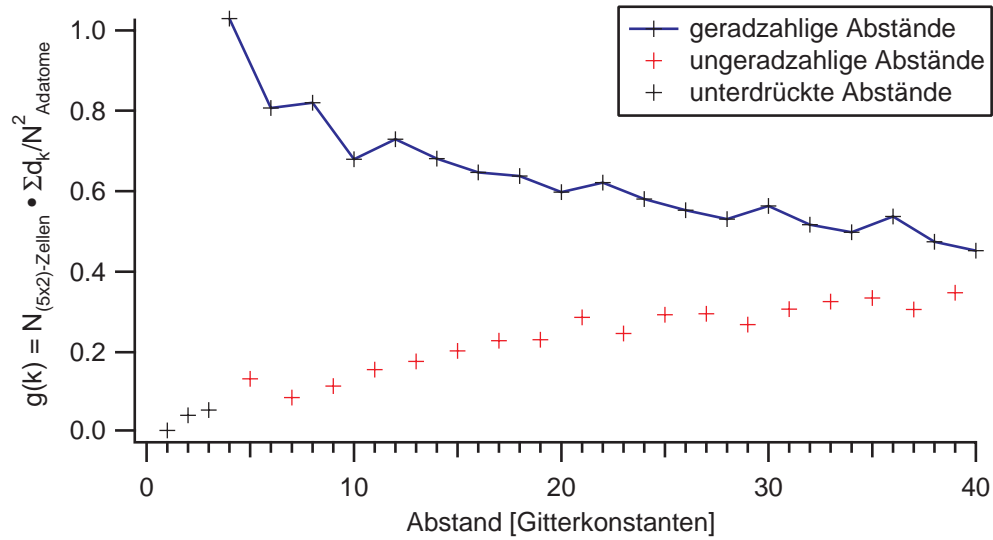


Abbildung 5.35: Aufgetragen ist die normierte Paarkorrelation von Adatomen in 2-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion für eine (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase. Ganzzahlige Abstände sind häufiger als ungeradzählige Abstände. Der häufigste Abstand zwischen zwei Adatomen ist wie gehabt 4 Gitterkonstanten. Geringere Abstände sind deutlich unterdrückt. Ungeradzählige Abstände sind stark unterrepräsentiert und nehmen mit steigendem Abstand zu. Eine leichte Oszillation ist für geradzahlige Abstände bei den Werten 4 Gitterkonstanten bis 12 Gitterkonstanten zu sehen.

Vergleich zu der (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase (Abb. 5.36). Dies führt bei der letzteren zu einem fast exponentiellem Angleich der geradzahligen mit den ungeradzahligen Abständen. Für die (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase ist deutlich eine Oszillation der geradzahligen Gitterabstände zu sehen, d.h. Abstände mit einem Vielfachen von vier Gitterkonstanten sind häufiger als die dazwischenliegenden geradzahligen Abstände. Für die (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase sind an einigen Stellen Anordnungen von Siliziumadatomen beobachtet worden, die jeweils mit einer, mit einem Goldatom besetzten, (5×2) -Zelle voneinander getrennt sind, d.h. einen Abstand von 6 Gitterkonstanten zueinander besitzen. Dies kann sehr gut erklären, wieso eine Oszillation der geradzahligen Abstände kaum sichtbar ist. Zum Vergleich mit der Verteilung für eine (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der (7×7) -Phase wurde eine rein zufällige Verteilung von

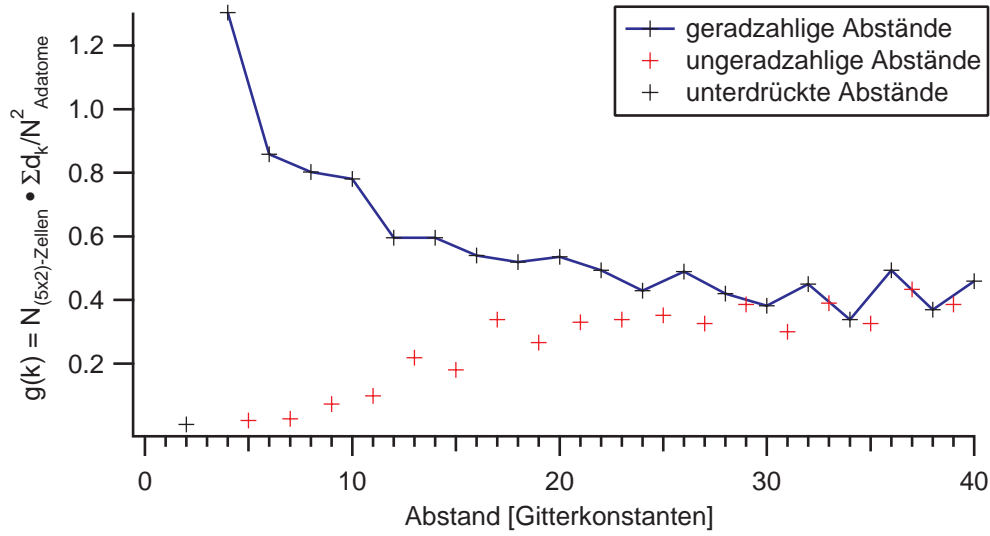


Abbildung 5.36: Aufgetragen ist die normierte Paarkorrelation von Adatomen in 2-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion für eine (5×2) -Rekonstruktion in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase. Ganzzahlige Abstände sind häufiger als ungeradzählige Abstände. Der häufigste Abstand zwischen zwei Adatomen ist wie gehabt 4 Gitterkonstanten. Geringere Abstände sind deutlich unterdrückt. Ungeradzählige Abstände sind stark unterrepräsentiert und nehmen mit steigendem Abstand zu. Der Anstieg ist dabei deutlich stärker für kürzere Abstände als im Fall der (5×2) -Phase in Koexistenz mit der (7×7) -Phase (Abb. 5.35). Eine Oszillation in den geradzahligen Abständen wird durch Goldadatome behindert (siehe Text).

Adatomen in einem Gitter simuliert. Dabei wird zufällig die Position eines Adatoms innerhalb des Gitters ermittelt. Ist diese oder die benachbarte Position schon mit einem Adatom besetzt, so wird die Position neu ausgewürfelt. Wie in Abb. 5.37 zu sehen, führt dies zu einem oszillatorischen Verhalten für geradzahlige Abstände. In der Arbeit von Kirakosian et al.[45] wurde dieses oszillatorische Verhalten näher untersucht und eine oszillatorische Wechselwirkung postuliert, die eine leicht stärkere Oszillation der Verteilung bewirkt als die rein zufällige Verteilung unter Berücksichtigung der repulsiven Wechselwirkung. Als mögliche Quelle für die Wechselwirkung wurde eine Ladungsdichtewelle – engl. "charge-density wave" – benannt.

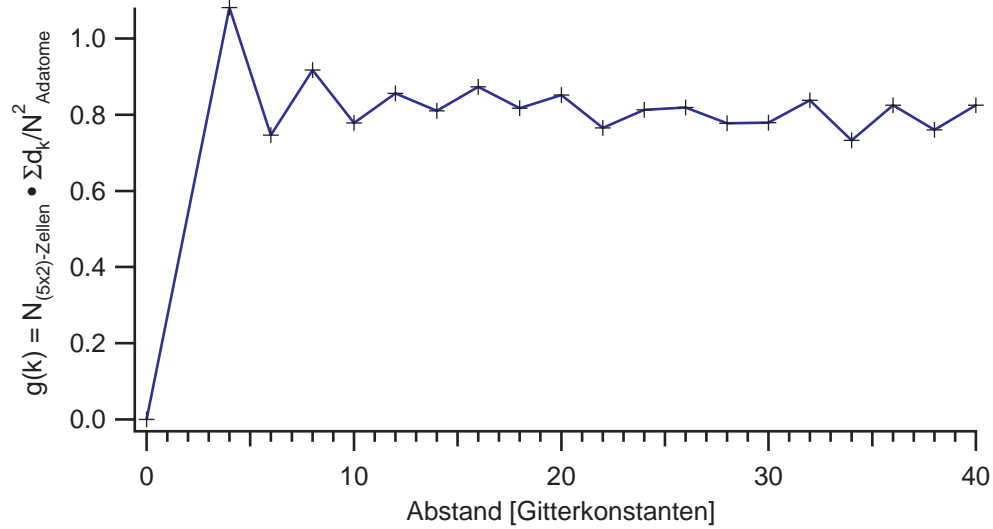


Abbildung 5.37: Normierte Paarkorrelation entlang einer Reihe für eine Zufallsverteilung. Da Phasenverschiebungen in dieser Verteilung nicht vorgesehen sind, sind alle ungeradzahligten Abstände nicht existent. Deutlich zu sehen ist eine Oszillation mit einer Häufung von Abständen von ganzzahligen vielfachen von vier Gitterkonstanten. Da das simulierte Gitter in seiner Größe auf die des jeweiligen ausgewerteten STM-Bildes eingeschränkt ist, sind längere Abstände unterrepräsentiert.

Diskussion der Ergebnisse

Es wurden Bilder verschiedener Präparationen mit einer Gesamtzahl von über 10000 Adatomen ausgewertet – sowohl für (5×2) -rekonstruierte Oberflächen in Koexistenz mit der (7×7) als auch für (5×2) in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase. Für beide Koexistenzphasen ist die Verteilung der Adatome rein zufällig. Eine schwache Wechselwirkung von Adatomen benachbarter Reihen ist nur andeutungsweise vorhanden und kann nicht zwingend belegt werden. In der Kettenbildung ergibt sich für die Koexistenzphase mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase eine erhöhte Wahrscheinlichkeit p' für ein benachbartes Adatom im Abstand von 4 Gitterkonstanten in 2-fach Richtung. Dies ist auf die Reduktion der Adsorptionsplätze für Adatome zurückzuführen. In der Paarkorrelation entlang der 2-fach Richtung zeigt sich für die Koexistenzphase mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion eine deutliche Zunahme an Phasenverschiebungen.

Ein weiteres Ergebnis der Auswertung der Adatomkorrelationen ist die Dichte der Adatome für jedes ausgewertete Bild. Die Bedeckung mit Adatomen ist im Mittel 0,036 ML, was in guter Übereinstimmung mit den Literaturwerten von 0,032 ML[4], 0,035[31] und 0,036[46] ist. Die Bandbreite der Ergebnisse ist allerdings mit 0,02 ML bis 0,062 ML sehr groß. Eine Abhängigkeit von der Goldbedeckung bzw. von der Temperatur konnte nicht erkannt werden. Für niedrige Temperaturen im Bereich von 400 °C und niedriger, in denen es nur kleine (5×2) -Domänen gibt, lässt sich die Bedeckung der Adatome nicht sinnvoll automatisiert bestimmen.

Da die Bandbreite der Adatombedeckung stark vom Bildausschnitt abhängt, ist es nicht möglich, die Ergebnisse von mehreren Bildern zu addieren, da z.B. gerade die Häufigkeit der Kettenlängen sehr stark von der Bedeckung der Adatome auf der Oberfläche abhängt.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass Adatome auf festen Plätzen innerhalb der (5×2) -Einheitszellen sitzen. Die Verteilung der Adatome über diese Einheitszellen ist rein zufällig. Die Einschränkung ist hierbei, dass der Mindestabstand zweier Adatome vier Gitterkonstanten in 2-fach Richtung beträgt. Die langreichweitige, attraktive Wechselwirkung zwischen Adatomen, die von Kirakosian et al.[45] gefunden worden ist, lässt sich nach meiner Auswertung nicht eindeutig belegen und liegt im Rahmen der Toleranzen bei der Bildauswertung. Insbesondere die Reduzierung der Adsorptionsplätze durch Phasenverschiebungen ist im Modell nicht berücksichtigt worden.

Die sehr variable Bedeckung mit Adatomen wurde im Mittel zu 0,036 ML bestimmt.

5.2.12 Simulation des Beugungsbilds der (5×2)

Simulationsprogramm

Das Simulationsprogramm ist mit der Software IDL von Research Systems, Inc. erstellt worden. Die Simulation dient dazu, unterschiedliche Anordnungen von Einheitszellen zu einem Gitter im Realraum zu generieren und deren Beugungsbild mit einer Fouriertransformation zu simulieren. Die Fouriertransformation dient dabei der Überführung der Abstände im Ortsraum in

den Frequenzraum, wie es im Beugungsbild natürlicherweise passiert.

In allen Simulationen wird nur eine der drei möglichen Domänenrichtungen simuliert.

Die Größe der simulierten Gitter ist, soweit nicht anders angegeben, 600 Gitterkonstanten \times 600 Gitterkonstanten groß gewählt. Die 2-fach Richtung des Gitters ist senkrecht zu der 5-fach Richtung festgelegt. Jede Zelle ist 5×2 Pixel groß und wird mit einem Pixel an fester Stelle innerhalb der Zelle links markiert. Auf die Markierung von Adatomen wird verzichtet, da diese im Beugungsbild nicht sichtbar sind (siehe Abschnitt 5.2.10).

Soweit nicht anders angegeben, ist der einzige Zusammenhang zwischen benachbarten Reihen der, dass die Startpunkte horizontal auf einer Linie liegen. Es wird also keine besondere Interaktion zwischen benachbarten Reihen simuliert.

Enthalten die Gitter unregelmäßig angeordnete Störungen, so werden die Fouriertransformierten von 20 Gittern aufaddiert. Die Fourierbilder werden im Anschluss so geschert, dass die 2-fach Richtung mit der 5-fach Richtung einen Winkel von 60° einschließt (s.u.).

Da die Reflexe im simulierten Beugungsbild sehr scharf ausfallen, müssen diese ähnlich wie im Experiment mit einer Instrumentenfunktion aufgeweitet werden. Dazu wird das Bild mit einer Gaußverteilung der willkürlichen Größe $40 \text{ Pixel} \times 40 \text{ Pixel}$ gefaltet.

Zur besseren Vergleichbarkeit mit den experimentellen Daten werden die transformierten Bilder ebenfalls logarithmisch dargestellt.

Wird in einer Simulation eine Gaußverteilung benutzt, dann handelt es sich hierbei um die Funktion "randomn" von IDL, die eine Normalverteilung um 0 mit einer Standardabweichung von 1 erzeugt. Die Anzahl n der generierten Zellen entlang der 2-fach Richtung entspricht dann $n = \text{randomn} \cdot \text{Breite} + \text{Mittelwert}$.

Artefaktreduzierung

Die Einheitszelle der (5×2) -Rekonstruktion ist eigentlich schiefwinklig und nicht rechteckig, wie oben festgelegt. Der Winkel zwischen den beiden Rich-

tungen der Einheitszelle beträgt 60° , d.h. die Einheitszelle müsste vor der Fouriertransformation um den Winkel 30° geschert werden. Die Scherung für alle im folgenden präsentierten Bilder wird aber erst nach der Fouriertransformation durchgeführt. Dies ist dem fehlenden Anti-Aliasing einer Scherung in IDL geschuldet, die mit treppenartigen Sprüngen im Gitterbild zu starken Artefakten im Fourierbild führen würde. Der einzige Nachteil einer Scherung nach der Fouriertransformation ist eine leichte elliptische Verzerrung von Reflexen in 2-fach Richtung.

Die Verwendung der Fouriertransformation – FFT für Fast-Fouriertransformation – führt bei endlicher Fenstergröße des zu transformierenden Ausschnitts im Frequenzraum zu einer Faltung des Spektrums der Rechtecksfunktion des Fensters mit dem Spektrum des eigentlichen Signals. Entspricht die Fenstergröße nicht einem ganzzahligen Vielfachen der Frequenzen des Signals, führt dies zum Auftreten weiterer Frequenzen im Spektrum – zum so genannten Leck-Effekt (engl. "Leak-Effect"). Um diese Artefakte zu reduzieren, muss eine künstliche Periodisierung des Signals mit Hilfe von so genannten Fensterfunktionen herbeigeführt werden. Dabei wird das Signal am Bildrand nicht mit einer Stufenfunktion angeschaltet, sondern graduell mit einer Fensterfunktion.

Für die Simulation wird – soweit nicht anders angegeben – das von-Hann-Fenster oder auch Hanning-Fenster[10] verwendet.

$$w(k) = 0,5 \cdot \left(1 - \cos \left(\frac{2 \cdot \pi \cdot k}{N - 1} \right) \right) \quad (5.3)$$

Wobei N die Fensterbreite – üblicherweise eine Potenz von 2 z.B. $2^{10} = 1024$ – des Fensters bezeichnet. k ist eine ganze Zahl von 0 bis $N - 1$.

Auf die Anwendung dieses Fensters sollte verzichtet werden, wenn die Größe des Gitters so gewählt ist, dass es einem Vielfachen der in dem Gitter auftretenden Längen entspricht. In diesem Fall wirkt sich das Fenster ungünstig aus.

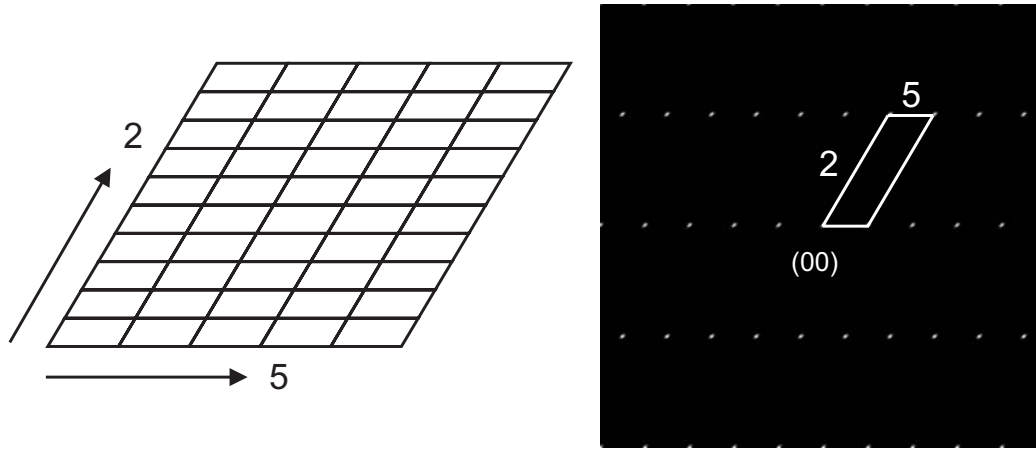


Abbildung 5.38: Simulation einer perfekten (5×2) -rekonstruierten Oberfläche in einer Domänenrichtung. Links ist das (5×2) Gitternetz aufgezeichnet, rechts das simulierte Beugungsbild mit einer Einheitszelle der (5×2) -Rekonstruktion.

Einführung von Phasenverschiebung benachbarter Reihen

Wie im Beugungsbild zu sehen (siehe Abb. 5.2, Seite 48), besitzen die (5×2) -rekonstruierten Bereiche eine deutliche Korrelation in 5-fach Richtung, die in allen im folgenden präsentierten, simulierten Beugungsbildern horizontal liegt. Die Korrelation der Einheitszellen entlang der 2-fach Richtung, die einen Winkel von 60° zur 5-fach Richtung einschließt, ist aber nicht perfekt. Wäre die Ordnung perfekt, so gäbe es deutliche Reflexe auf halber Brillouin-Zone – Abb. 5.38 zeigt dazu die FFT-Simulation.

Diese Korrelation wird aufgebrochen durch einen Versatz der (5×2) -Zellen entlang der Streifen in 2-fach Richtung um eine Gitterkonstante, d.h. ein halber Zellenabstand. Eine einfacher Ansatz, wie von Lipson und Singer[53] durchgeführt, besteht darin, einen zufälligen Versatz zwischen zwei benachbarten Streifen zu konstruieren, wobei eine Wahrscheinlichkeit von 50% für einen Versatz in dem dazu erzeugten FFT-Bild die größte Ähnlichkeit mit dem Beugungsbild besitzt, wie in Abb. 5.39 dargestellt. Geringe Wahrscheinlichkeiten wie 10%⁶ führen zu einer leichten Verschmierung der Streifen in 2-fach Richtung mit noch deutlichen Reflexen für eine perfekte (5×2) -Rekonstruktion.

⁶qualitativ dasselbe wie $100\% - 10\% = 90\%$

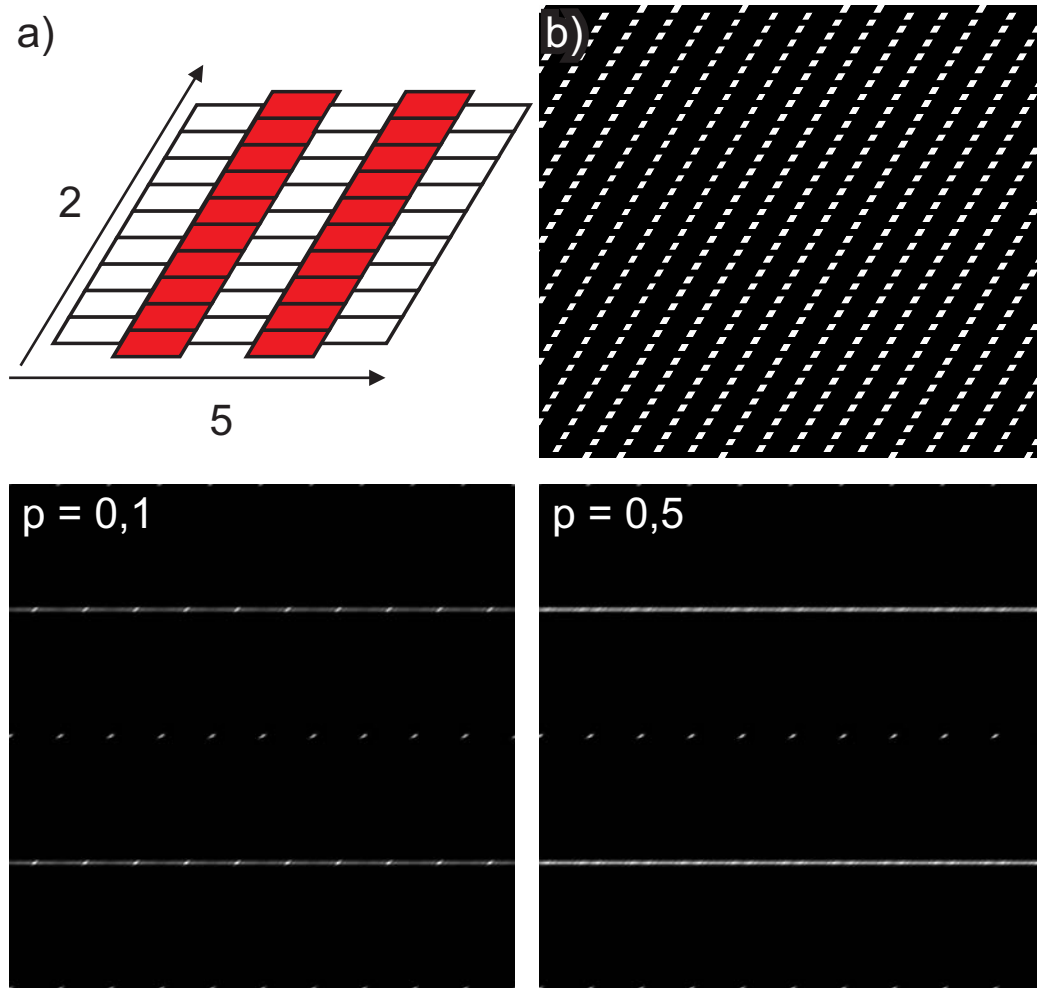


Abbildung 5.39: Dargestellt ist das Modell einer zufälligen Phasenverschiebung einer Reihe entlang der 2-fach Richtung nach Lipson et al.[53]. In a) ist das schematische Modell dargestellt, wobei die rot markierten Reihen um eine Gitterkonstante verschoben sind. In b) ist ein Ausschnitt des dafür generierten Gitters dargestellt. Die Phasenverschiebung lässt sich gut am oberen Rand des Gitter festmachen. In der unteren Reihe ist das simulierte Beugungsbild für die Wahrscheinlichkeit einer Phasenverschiebung einer Reihe von 10 % (links) bzw. 50 % (rechts) dargestellt. Mit 10 % Wahrscheinlichkeit sind die deutlichen Reflexe auf halber BZ nur leicht entlang der 5-fach Richtung verschmiert. Bei 50 % sind die Streifen durchgängig entlang der 2-fach Richtung, mit einer leichten Modulation im Abstand von $1/5$ BZ.

Einführung von Phasenverschiebungen

Wie in Abschnitt 5.2.5 ausgeführt, gibt es innerhalb (5×2) -rekonstruierter Bereiche Abschnitte, die eine Phasenverschiebung, einen Versatz um eine Gitterkonstante bewirken. Dies führt zu Abschnitten innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche, in denen benachbarte Reihen entweder in Phase bzw. in Gegenphase sind.

Im folgenden werden verschiedene Ansätze, diese Phasenverschiebungen einzubauen, und deren Auswirkung auf das Beugungsbild präsentiert. Ein Versatz benachbarter Reihen als ganzes wie im vorherigen Abschnitt wird dabei nicht angenommen – er ergibt sich für Teilbereiche aus den erzeugten Phasenverschiebungen.

Ebenfalls wird eine Halbwertsbreite für die Streifen auf halber BZ in allen gezeigten simulierten Beugungsbildern mit einem Gaußfit ermittelt. Diese dient allein zum Vergleich der Simulationen untereinander. Wegen der willkürlich gewählten Gaußverteilung zur Faltung mit dem transformierten Bild, sowie der Scherung nach der Transformation (s.o.), ist die ermittelte Halbwertsbreite nicht direkt mit den experimentell ermittelten Halbwertsbreiten wie in Abschnitt 5.2.3 zu vergleichen.

Feste Wahrscheinlichkeit pro Zelle für Einbau einer Phasenverschiebung

Der erste Ansatz ist in Abb. 5.40 zu sehen. Die Reihen werden entlang der 2-fach Richtung aufgebaut. Mit dem Einbau jeder einzelnen (5×2) -Zelle besteht eine feste Wahrscheinlichkeit p , dass eine Phasenverschiebung von einer Gitterkonstante eingebaut wird. Dies führt ebenso zu Streifen im Beugungsbild wie der Versatz ganzer Reihen um eine Gitterkonstante wie in Abb. 5.39 dargestellt. Das Profil der Streifen ist sehr spitz, mit einer breiten Basis. Die minimale Wahrscheinlichkeit für eine Phasenverschiebung liegt in der Simulation bei etwa 1 %. Unter diesem Wert besitzen die beiden Streifen Maxima entlang der 5-fach Richtung im Abstand von $1/5$ BZ.

Mit steigender Wahrscheinlichkeit wird das Streifenprofil senkrecht zur Streifenlänge immer diffuser. Ab einer Wahrscheinlichkeit von 50 % spaltet

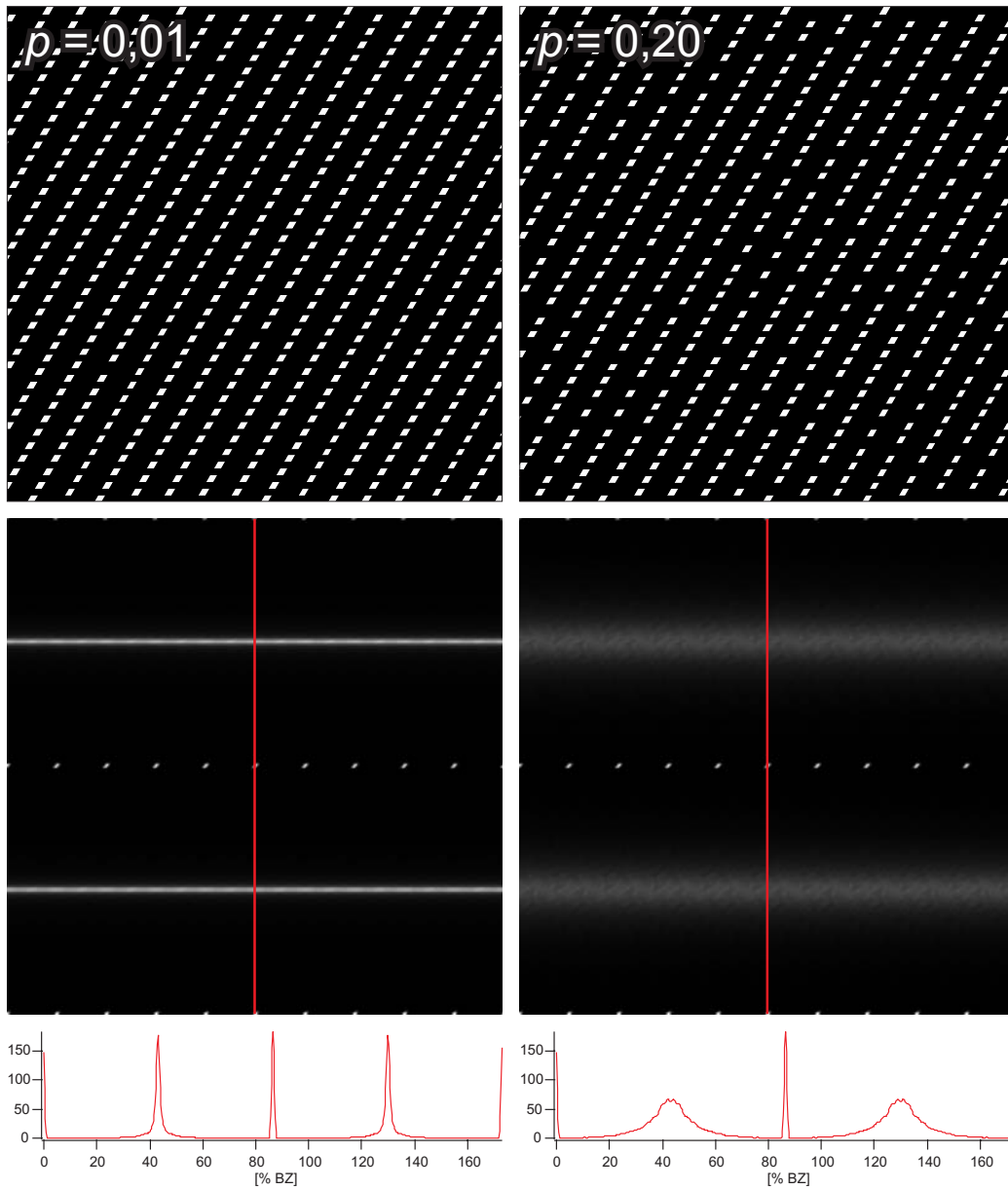


Abbildung 5.40: Das Aufbauprinzip dieser Simulation ist eine feste Wahrscheinlichkeit p pro Einbau einer weiteren (5×2) -Zelle in 2-fach Richtung für das Einfügen eines Versatzes von einer Gitterkonstante. Dargestellt sind für die Wahrscheinlichkeit von 1 % bzw. 20 % ein Ausschnitt des erzeugten Gitters, das logarithmisch dargestellte Beugungsbild, sowie entlang der roten Linie das linear dargestellte Profil. Die Halbwertsbreiten der Streifen für einen Gaußfit ergeben sich zu 1,9 % BZ bzw. 14,8 % BZ.

der Streifen in zwei Streifen auf – entsprechend einer ungeordneten (5×3) -Rekonstruktion jeweils auf $1/3$ bzw. $2/3$ BZ.

Linear ansteigende Wahrscheinlichkeit für Phasenverschiebung

Zum Vergleich geht der zweite Ansatz - in Abb. 5.41 dargestellt - von einer linear ansteigenden Wahrscheinlichkeit aus, z.B. erste Zelle 1 %, zweite Zelle 2 %, dritte Zelle 3 % usw. für den Einbau einer Phasenverschiebung aus. Nach dem Einbau einer Phasenverschiebung sinkt die Wahrscheinlichkeit p wieder auf ihren Startwert – z.B. 1%. Dies folgt der Idee aus Abschnitt 5.2.5, dass Phasenverschiebungen eine sich aufbauende Druckspannung abbauen. Das führt schon bei einer Änderung der Wahrscheinlichkeit von 0,5% pro (5×2) -Einheitszelle zu einer deutlichen Aufspaltung der Streifen in zwei Streifen. Die Aufspaltung wird mit steigender Wahrscheinlichkeit und damit höheren Anzahl von Phasenverschiebungen größer.

Neben einer linear mit der Domänenlänge ansteigender Wahrscheinlichkeit wurden auch andere Funktionen ausprobiert. Der lineare Ansatz mit steigender Wahrscheinlichkeit für eine Phasenverschiebung wird stark übertrieben mit einem exponentiellem Anwachsen der Wahrscheinlichkeit – einer Verdopplung der Wahrscheinlichkeit pro Einheitszelle. Qualitativ ändert sich das Bild gegenüber dem vorherigen Ansatz nicht, so dass das Ergebnis hier nicht abgebildet ist. Auch ein weiterer Ansatz - Gaußverteilung um eine feste Länge einer (5×2) -Domänenreihe zwischen zwei Phasenverschiebungen - führt zu einer deutlichen Aufspaltung der Streifen. Allen drei Ansätzen gemein ist eine resultierende Längenverteilung von (5×2) -rekonstruierten Reihenabschnitten – Domänen gleicher Phase, die mehr oder weniger stark um einen Mittelwert schwankt (Siehe auch Abb. 5.44). Dies führt indirekt zu einer schwachen Ordnung von Phasenverschiebungen, die im nächsten Abschnitt weiter diskutiert wird.

Eine interessante Variation der Wahrscheinlichkeiten ist eine gewisse Basiswahrscheinlichkeit für eine Phasenverschiebung pro Einheitszelle, die sich relativ gering pro Einheitszelle erhöht, wie in Abb. 5.42 dargestellt. Damit wird eine gewisse Verbreiterung des Streifenprofils in der Spitze erreicht. Als

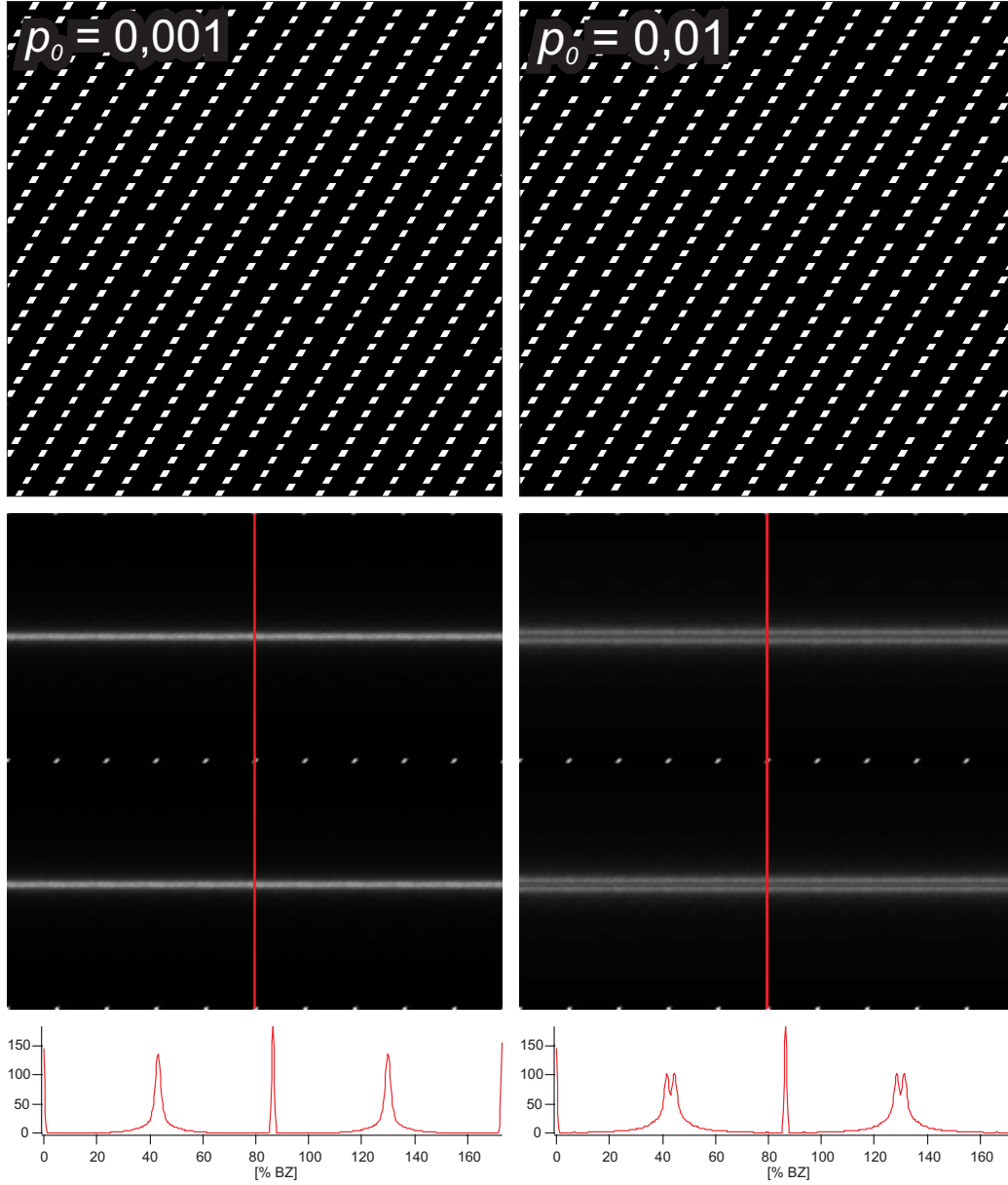


Abbildung 5.41: Das Aufbauprinzip dieser Simulation ist eine linear ansteigende Wahrscheinlichkeit für eine Phasenverschiebung mit dem Einbau jeder weiteren (5×2) -Zelle in 2-fach Richtung: $p = p_0 + n \cdot p_0$. Nach dem Einbau einer Phasenverschiebung sinkt die Wahrscheinlichkeit p wieder auf ihren Startwert p_0 ab. Für geringe Wahrscheinlichkeiten entspricht das Ergebnis qualitativ dem aus Abb. 5.40, für größere Wahrscheinlichkeiten spalten die Streifen auf.

Dargestellt sind ein Ausschnitt der erzeugten Gitter, das zugehörige simulierte, logarithmisch dargestellte, Beugungsbild sowie das Profil entlang der roten Linie. Die Halbwertsbreite der Streifens beträgt mit Gaußfit 3,2 % BZ bzw. 7,3 % BZ.

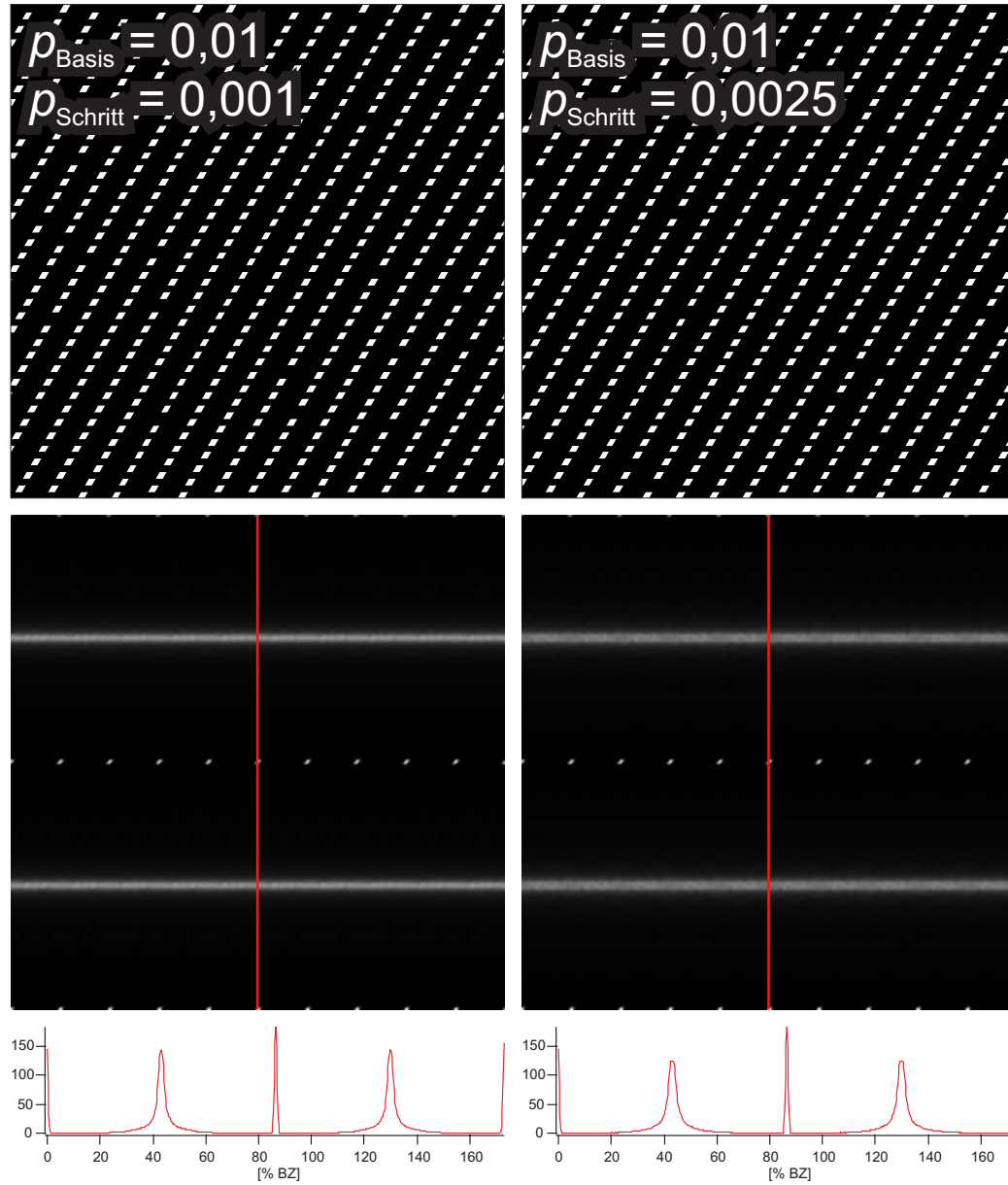


Abbildung 5.42: Dargestellt sind Ausschnitt des erzeugten Gitters, simuliertes Beugungsbild und das Profil entlang der roten Linie. Das Aufbauprinzip des Gitters ist eine gewisse Anfangswahrscheinlichkeit p_{Basis} pro Einbau einer (5×2) -Einheitszelle, eine Phasenverschiebung einzubauen. Mit dem Einbau jeder weiteren Stufe wächst diese linear um einen vorgegebenen Wert p_{Schritt} an: $p = p_{\text{Basis}} + n \cdot p_{\text{Schritt}}$. Dieser zweite Wert ist kleiner als der Basiswert gewählt, da sich sonst das Ergebnis kaum von dem in Abb. 5.41 präsentierten unterscheiden kann. Als Ergebnis des Ansteigens des zweiten Wertes verbreitert sich die Spitze des Streifenprofils und der Untergrund erhöht sich relativ zum Maximalwert. Die mit einem Gaußfit ermittelte Halbwertsbreite der Streifen ist 3,3 % BZ bzw. 4,1 % BZ.

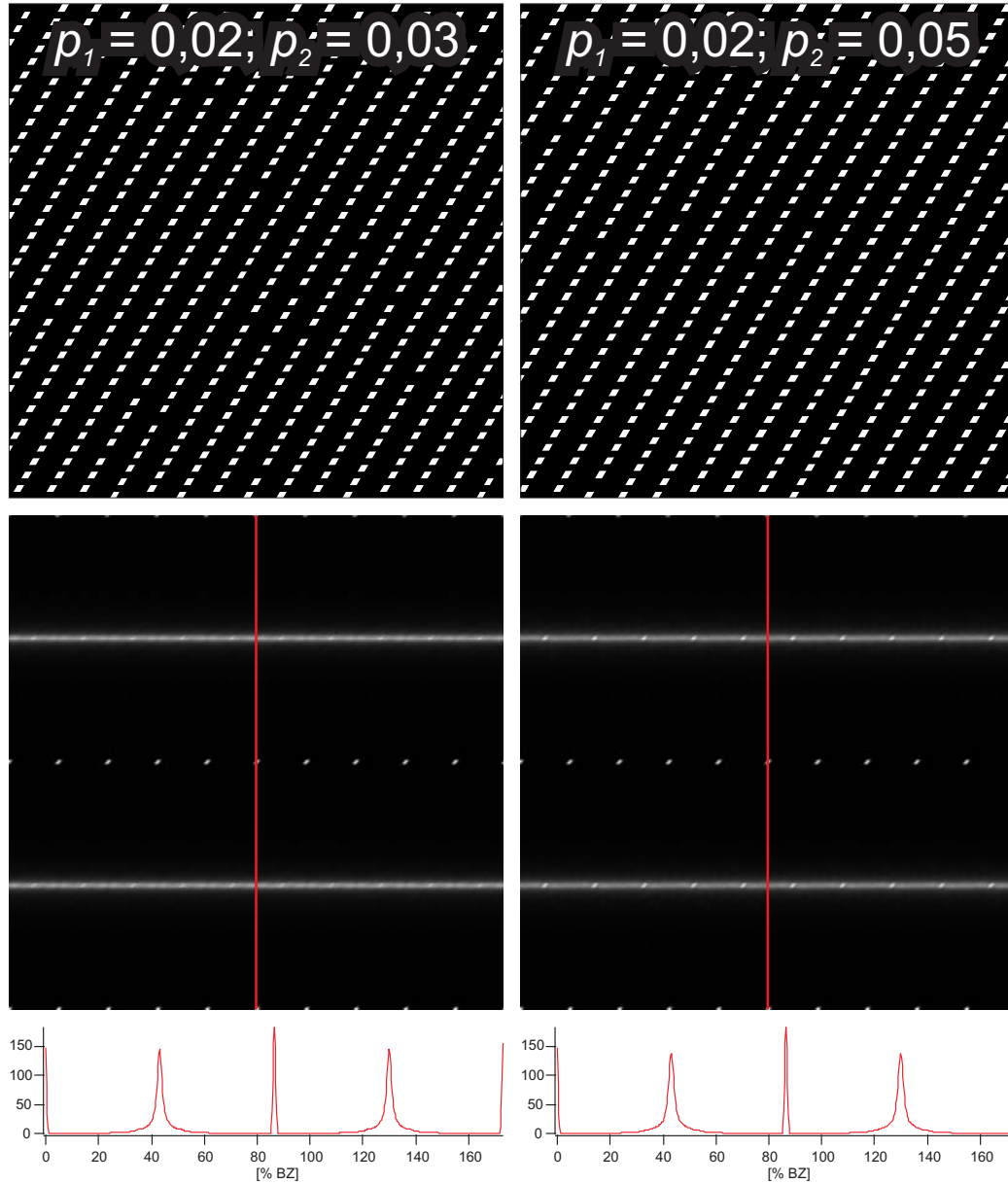


Abbildung 5.43: In diesem Modell wechselt die Wahrscheinlichkeit für den Einbau einer Phasenverschiebung mit jeder Phasenverschiebung zwischen zwei Werten. Dargestellt sind für zwei Parametersätze jeweils Ausschnitt aus dem erzeugten Gitter, zugehöriges simuliertes, logarithmisch dargestelltes, Beugungsbild und ein Profil entlang der roten Linie. Es bilden sich Maxima im Abstand von $1/5$ BZ entlang der 5-fach Richtung innerhalb der Streifen.

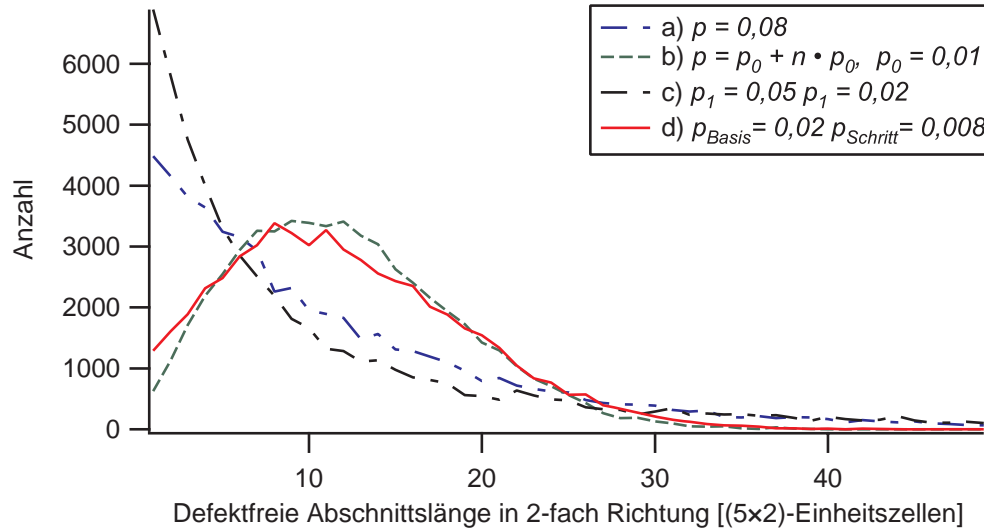


Abbildung 5.44: Dargestellt ist die Längenverteilungsfunktion der Abschnitte ohne Phasenverschiebungen in 2-fach Richtung für verschiedene Modelle. Für die Vergleichbarkeit der verschiedenen Verteilungsfunktionen sind die Variablen für alle Modelle so gewählt, dass die Dichte der Phasenverschiebungen bei etwa 0,08 Phasenverschiebungen pro Einheitszelle liegt.

In a) ist die Wahrscheinlichkeit p für den Einbau einer Phasenverschiebung ein fester Wert pro Einbau einer (5×2) -Zelle (siehe Abb. 5.40, Parameter $p = 0,08$).

In b) ist die Wahrscheinlichkeit für den Einbau einer Phasenverschiebung linear ansteigend mit dem Einbau jeder weiteren (5×2) -Zelle: $p = p_0 + n \cdot p_0$ (siehe Abb. 5.41, $p_0 = 0,01$).

In c) dargestellt ist das Modell mit einem Wechsel der Wahrscheinlichkeiten mit dem Einbau einer Phasenverschiebung (siehe Abb. 5.41, $p_1 = 0,05, p_2 = 0,02$).

In d) dargestellt ist das Modell mit einem festen Basiswert p_{Basis} und einem linear ansteigendem Anteil pro Einbau einer Zelle (siehe Abb. 5.42, Parameter $p_{Basis} = 0,02, p_{Schritt} = 0,008$).

Ergebnis dieser Variation lässt sich feststellen, dass eine geringe Erhöhung der Wahrscheinlichkeit pro Einheitszelle im Experiment eher eine Verbreiterung der Streifen bewirkt, als eine Aufspaltung. Da alle Reflexe im Beugungsbild im Experiment verbreitert sind, kann eine leichte Erhöhung der Wahrscheinlichkeit pro Einheitszelle nicht ausgeschlossen werden. Mehr Aufschluss würde hier ein 1D-Profil mit hoher Auflösung der Streifen im Beugungsbild und einer hohen Statistik ergeben.

Dass die Phasenverschiebungen im großen und ganzen gleichverteilt sein sollten, zeigt die Simulation in Abb. 5.42. Dort wechselt die Wahrscheinlichkeit für den Einbau einer Phasenverschiebung zwischen zwei Werten. Dies führt zu abwechselnd langen Abschnitten ohne Defekten. Zu sehen ist, dass sich Maxima im Abstand von $1/5$ BZ in 5-fach Richtung in den Streifen ausbilden.

Ordnung von Phasenverschiebungen

Wie oben in der Simulation gezeigt, ist die Bildung von Streifen im Beugungsbild das Ergebnis einer gestörten Anordnung der Einheitszellen der (5×2) -Rekonstruktion. Diese ist Folge einer Dichte von Phasenverschiebungen, die, zufällig über die rekonstruierten Bereiche verteilt, die Phasenbeziehung zwischen benachbarten Reihen auflösen. In der Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase sind die Streifen wellenartig moduliert. Dies legt eine gewisse Korrelation zwischen den Phasenverschiebungen nahe.

In Abb. 5.45 ist ein einfaches Beispiel für eine Korrelation von Phasenverschiebungen bzw. Defekten dargestellt. Sind die Phasenverschiebungen benachbarter Reihen bevorzugt parallel entlang der 5-fach Richtung angeordnet, führt dies zu einer Aufspaltung der Reflexe auf halber BZ in ein Bündel von Reflexen entlang der 2-fach Richtung. Die Größe der Aufspaltung im Beugungsbild wird reziprok über die Länge einer Reihe zwischen zwei Phasenverschiebungen eingestellt.

Wird eine ziegelmauerartige Anordnung gewählt, so führt dies zu zusätzlichen Bündeln, da Bereiche gleicher Phase nun nicht mehr direkt benachbart sind, sondern in jeder zweiten Reihe in 5-fach Richtung liegen.

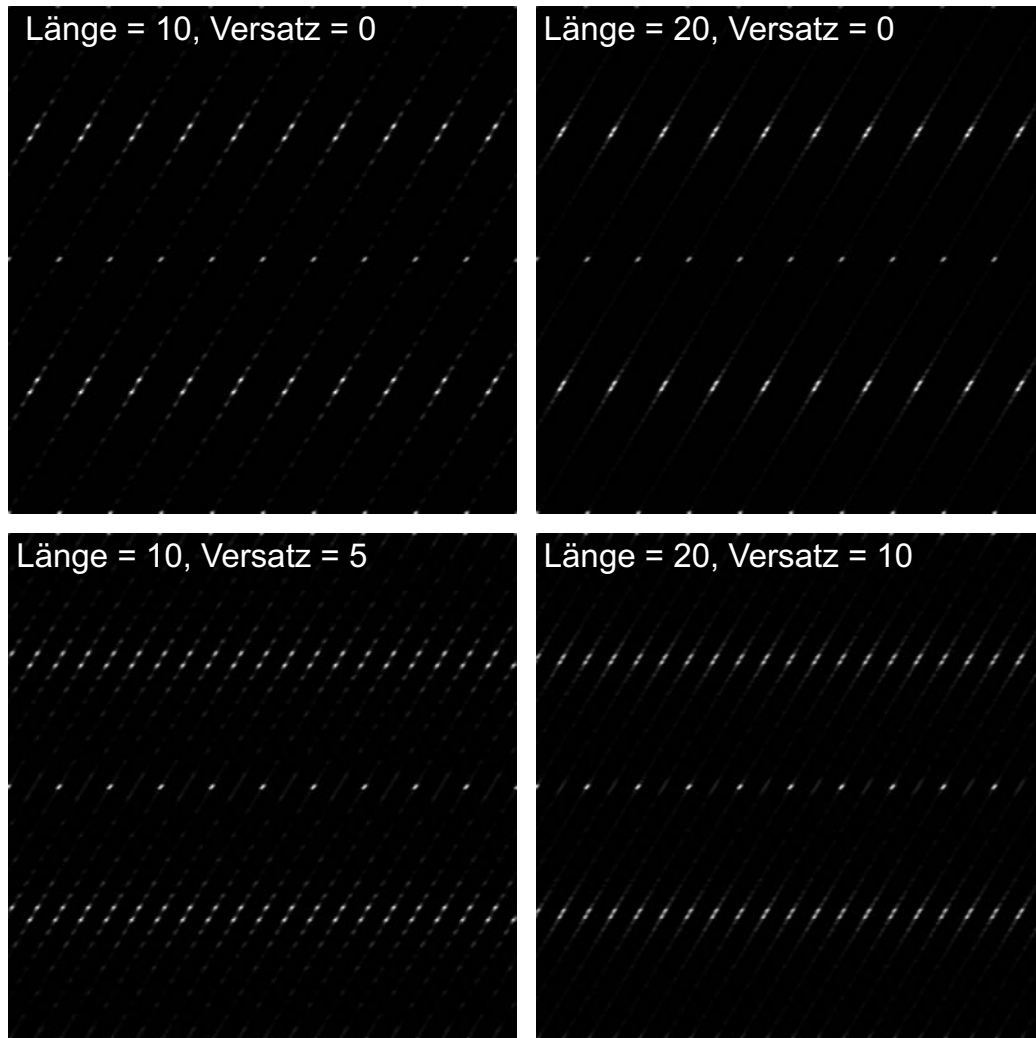
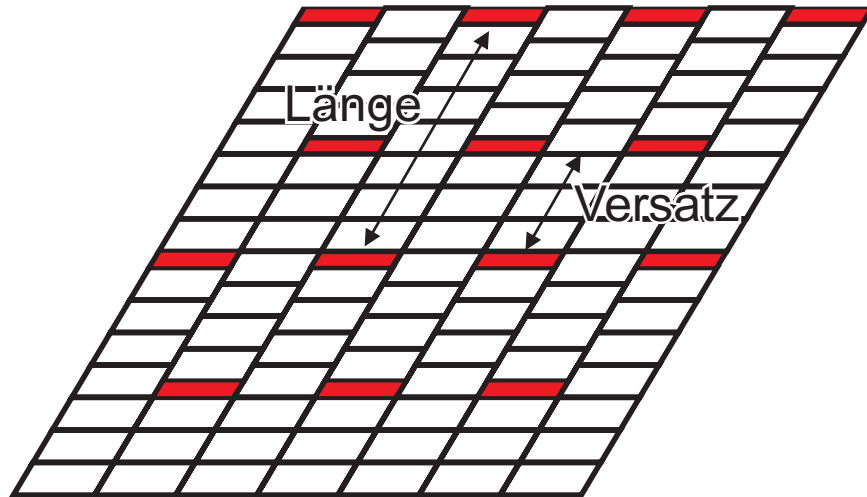


Abbildung 5.45: Dargestellt ist ein Aufbau der (5×2) -Domänen mit parallelen (Versatz = 0) Phasenverschiebungen in benachbarten Reihen bzw. ziegelmauerartig versetzten Phasenverschiebungen (Versatz = halbe Länge der Reihenabschnitte) wie im Modell oben dargestellt. Um Bündel an Reflexen innerhalb des Bildes gut erkennen zu können, wurde auf die logarithmische Darstellung der Bilder verzichtet.

In Abb. 5.46 ist das Modell dahingehend variiert worden, dass die Phasenverschiebungen pro Reihe um einen festgelegten Wert in (5×2) -Einheitszellen in 2-fach Richtung versetzt werden. Dies führt dazu, dass sich die Richtung der Reflexbündel im Vergleich zu dem Modell in Abb. 5.45 mit steigenden Versatz pro Reihe aus der 2-fach Richtung herausdreht. Dies ist nicht überraschend, da ein kumulativer Versatz pro Reihe gleichbedeutend mit einer Scherung ist, d.h. die Pseudo-Einheitszelle, die sich aus der Anordnung der Phasenverschiebungen ergibt und zu den Reflexbündeln führt, wird ebenso geschert. Über den Grad der Scherung d.h. dem Versatz pro Reihe kann die Drehung der Reflexbündel so eingestellt werden, dass sich die Reflexbündel in Richtung der Schlangenlinie drehen und bei gegebener Störung der Anordnung in Richtung der Aufspaltung verschmieren. Damit lassen sich entweder ansteigende oder abfallende Flanken der wellenartigen Modulation erzeugen.

Ein denkbarer Ansatz für die Anordnung der Phasenverschiebungen wie in Abb. 5.46 ist eine repulsive Wechselwirkung der Phasenverschiebungen untereinander entlang der Reihen. Eine repulsive Wechselwirkung von Phasenverschiebungen benachbarter Reihen ist auszuschließen, da sich die Phasenverschiebungen dann wie Fugen in einer Ziegelsteinmauer anordnen müssten. Ebenso bedeutet eine repulsive Wechselwirkung, dass sich die Natur der Phasenverschiebungen in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase von denen in Koexistenz mit der (7×7) -Phase unterscheiden muss.

Da 2-fach und 5-fach Richtung der Rekonstruktion einen Winkel von 60° einschließen, ist ein Rand mit einem Winkel von 60° zur 2-fach Richtung der Normalfall. Alle (5×2) -rekonstruierten Reihen starten dabei ohne Phasenverschiebung zueinander am Rand. Um Reflexbündel verschiedener Richtungen zu erhalten, wird ein gekrümmter Rand benötigt, d.h. die Reihen in der Mitte sind weiter gewachsen als die am Rand. Bei hohen Präparationstemperaturen (siehe Abschnitt 6.3, Seite 141) geschieht das genaue Gegenteil. Die Domänen werden bei steigender Temperatur, wo die Modulation eigentlich stärker ausgeprägt ist (Abschnitt 5.2.3, Seite 55), runder und nicht spitzer. Ich schließe daher eine wellenartige Modulation der Streifen als das alleinige Ergebnis einer Anordnung von Phasenverschiebungen aus.

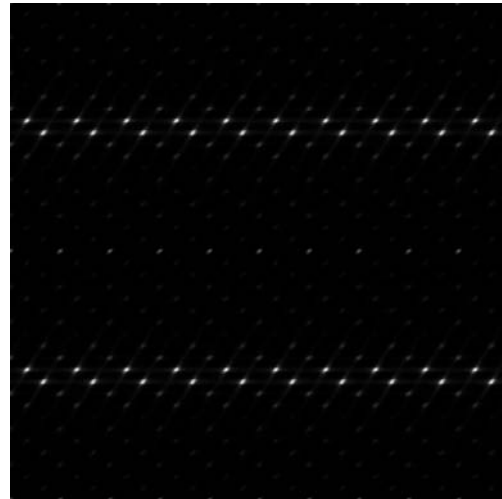
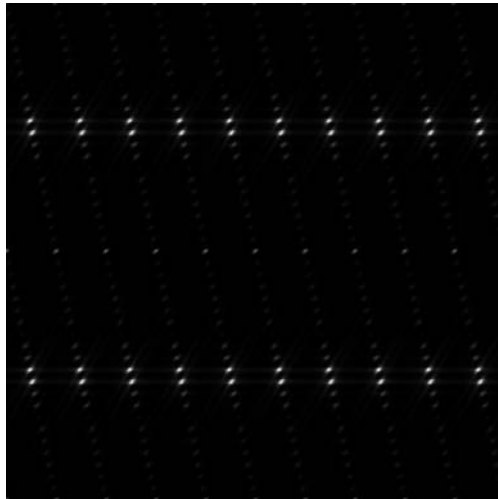
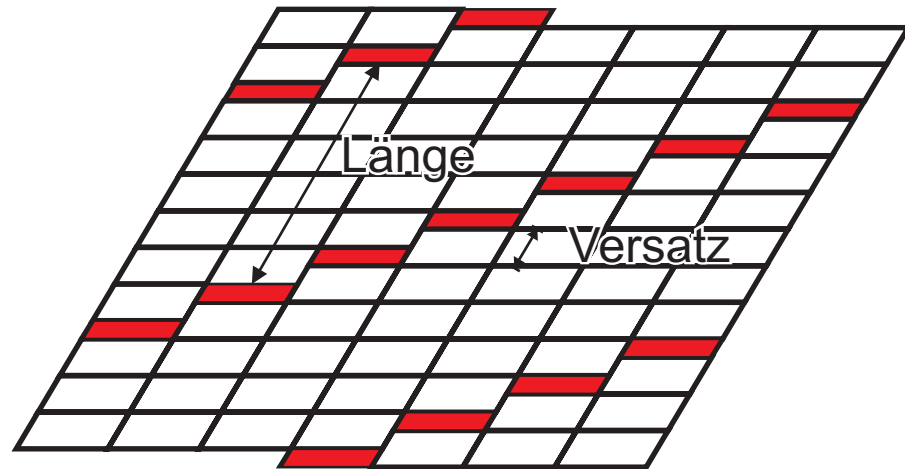


Abbildung 5.46: Dargestellt sind schematisches Modell für die Anordnung von Phasenverschiebungen (oben) sowie Ausschnitt des erzeugten Gitters und simuliertes Beugungsbild für zwei unterschiedliche Versätze zwischen benachbarten Phasenverschiebungen. In diesem Modell besitzen die Phasenverschiebungen innerhalb einer Reihe einen festgelegten Abstand "Länge" in (5×2) Einheitszellen. Phasenverschiebungen in benachbarten Reihen sind um einen vorgegebenen "Versatz"-Wert in Einheitszellen in 2-fach Richtung kumulativ für folgende Reihen verschoben.

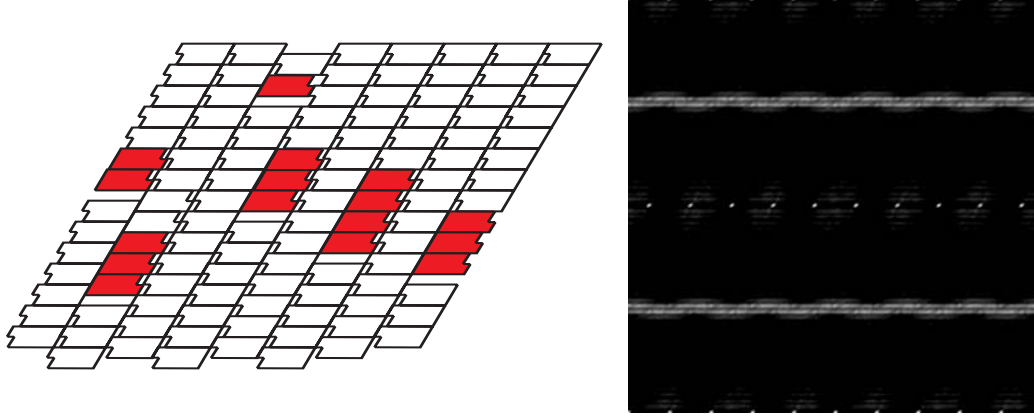


Abbildung 5.47: In diesem Modell gibt es zwei Arten von Spiegeldomänen. Die zur Vorzugsrichtung gespiegelte ist rot markiert. Die Einführung einer Spiegeldomäne ist mit einer Phasenverschiebung um eine Gitterkonstante in 2-fach Richtung verbunden. Die Längenverteilung der einzelnen Domänen besitzt eine Gaußverteilung um eine mittlere Länge von 15 bzw. 3 Zellen, entsprechend 30 Gitterkonstanten und 6 Gitterkonstanten. Das simulierte Beugungsbild ist rechts dargestellt. Zu sehen ist, dass die ansteigenden und abfallenden Flanken der Welle gleiche Intensität besitzen.

Spiegeldomänen

Wie in Abb. 5.14, Seite 66 zu sehen, gibt es Spiegeldomänen innerhalb der (5×2) -rekonstruierten Bereiche. Dabei liegen die markanten Merkmale der 2-fach Richtung (siehe Abb. 5.10, Seite 60) auf der gegenüberliegenden Seite, sie sind entlang der 2-fach Richtung gespiegelt. Dies ist mit einer Phasenverschiebung um eine Gitterkonstante in 2-fach Richtung verbunden.

Um diese Spiegeldomänen in der Simulation zu reproduzieren, wird der Zellenmarker von seinem Platz links in der Einheitszelle um vier Gitterkonstanten in 5-fach Richtung verschoben. Die Längen der Abschnitte einer Spiegeldomäne werden mit einer Gaußverteilung variabler Breite um einen Mittelwert herum festgelegt. Abschließend wird jeweils eine Phasenverschiebung um eine Gitterkonstante eingeführt, wie sie auch im STM-Bild in Abb. 5.14, Seite 66 zu finden ist. Die Länge der Abschnitte mit den ungespiegelten (5×2) -Bereichen wird ebenso mit einer Gaußverteilung um einen Mittelwert bestimmt. Das Ergebnis ist in Abb. 5.47 dargestellt.

Parameter für Spiegeldomänen

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der für die Spiegeldomänen verwendeten Parameter auf das Modell (siehe Abb. 5.47) einzeln untersucht. Die Länge der ungespiegelten, dominanten und weiß markierten Domänen in 2-fach Richtung ist im Mittel auf 15 Zellen festgelegt worden, mit einer Gaußverteilung der Breite entsprechend 8 Zellen. Die Länge der dazu gespiegelten und rot markierten Domänen ist im Mittel 2 Zellen, mit einer Gaußverteilung entsprechend der Breite 1. Im folgenden werden diese Parameter beibehalten und jeweils einzeln variiert.

Um zu sehen, ob das Modell einer Spiegeldomäne der Modulation im Beugungsbild am besten entspricht, wird als erstes der Einfluss der Verschiebung in 5-fach Richtung auf die Modulation untersucht. Dazu wird die Verschiebung in ganzzahligen Schritten von ein bis vier Gitterkonstanten durchfahren (siehe Abb. 5.48). Die Wirkung ist wie in der Simulation von festen Abschnittslängen zwischen Defekten eine Aufspaltung der Reflexe auf halber BZ, die durch die Gaußverteilung der Abschnittslängen in 2-fach Richtung verschmiert sind. Mit Einschaltung der Verschiebung kommt eine wellenartige Modulation der Streifen auf halber BZ. Die "Wellenlänge" der Streifen hängt dabei von der Verschiebung ab und nimmt von kleiner Verschiebung zu großer Verschiebung ab. Eine "Wellenlänge" von 25% stellt sich dabei bei einer Verschiebung von vier Gitterkonstanten ein.

In Abb. 5.49 wird der Einfluss der Länge der ungespiegelten (5×2) -Bereiche – in Abb. 5.47 die weiß markierten Bereiche – in 2-fach Richtung untersucht. Mit dem Erhöhen der Länge der (5×2) -Abschnitte wird die Anzahl der Spiegeldomänen automatisch verringert. Die Simulation in a) mit der höchsten Dichte an Spiegeldomänen weist eine Mischung aus alternierenden Streifen und einer wellenartigen Modulation auf. Eine Dichte der Spiegeldomänen von etwa 20% in b) stimmt mit dem experimentellen Beugungsbild am besten überein. Eine zu geringe Dichte von Spiegeldomänen wie in c) führt zu deutlichen Reflexen auf halber BZ, die leicht aufgespalten sind.

In Abb. 5.50 wird die Auswirkung einer Variation der Breite der Längenverteilung für eine Domänenrichtung untersucht. Das Ergebnis ist eine

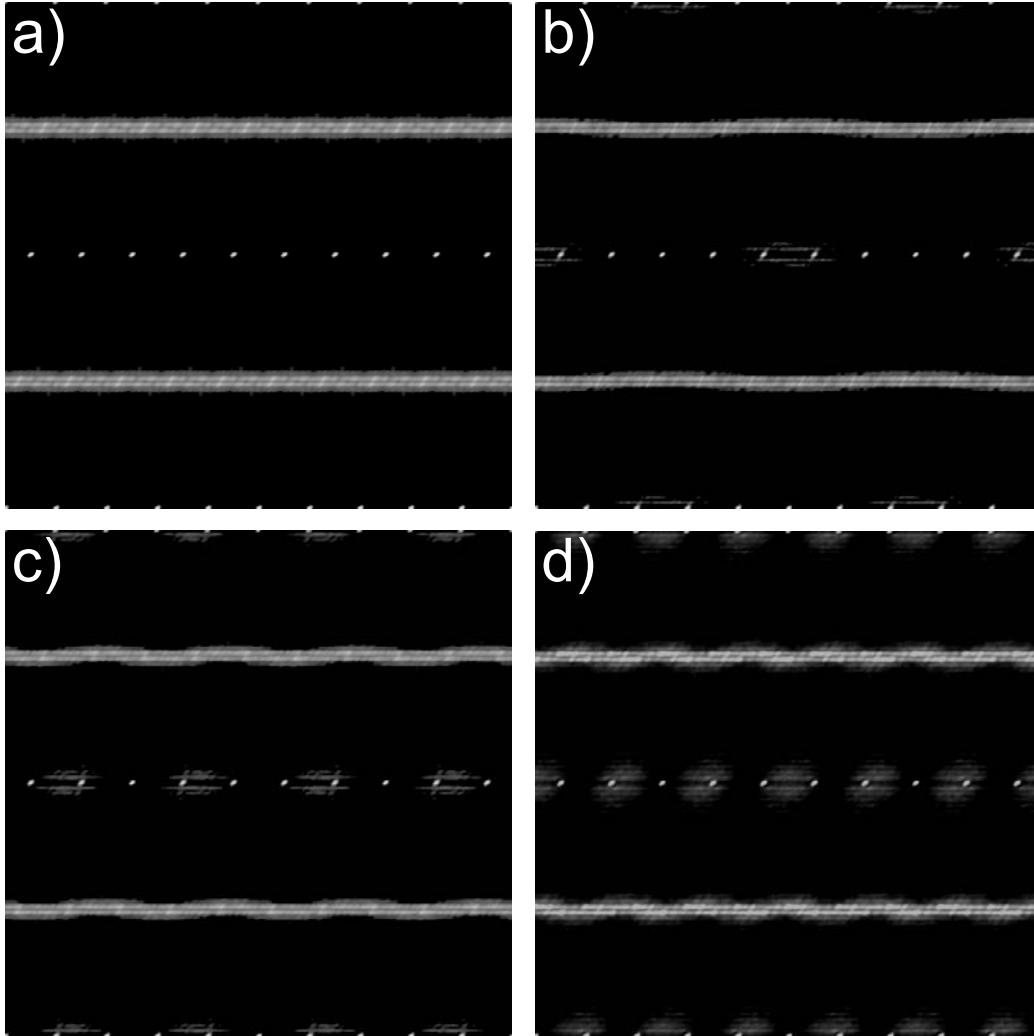


Abbildung 5.48: Einfluss der Markerposition einer Gitterzelle auf das Beugungsbild. Das Gitter wird ansonsten nach den Vorgaben wie in Abb. 5.47 erzeugt. Der Marker für die Spiegeldomänen wird von Position a) nach d) 1-4 Gitterkonstanten in 5-fach Richtung der Zelle verschoben. Die Verschiebung des Markers in 5-fach Richtung hat einen deutliche Einfluss auf die "Wellenlänge" der Streifenmodulation im Beugungsbild. In a) mit Verschiebung 1 Gitterkonstante ist der Streifen verbreitert und die Modulation besitzt die "Wellenlänge" 100 % BZ, in b) besitzt die Modulation eine "Wellenlänge" von 50 % BZ, in c) eine "Wellenlänge" von 33 % BZ und in d) eine "Wellenlänge" von 25 % BZ. Die letzte Position in d) entspricht dabei am ehesten einer Spiegelung der Zelle mit der 2-fach Richtung als Spiegellachse und führt zur besten Übereinstimmung mit dem experimentell gemessenen Beugungsbild.

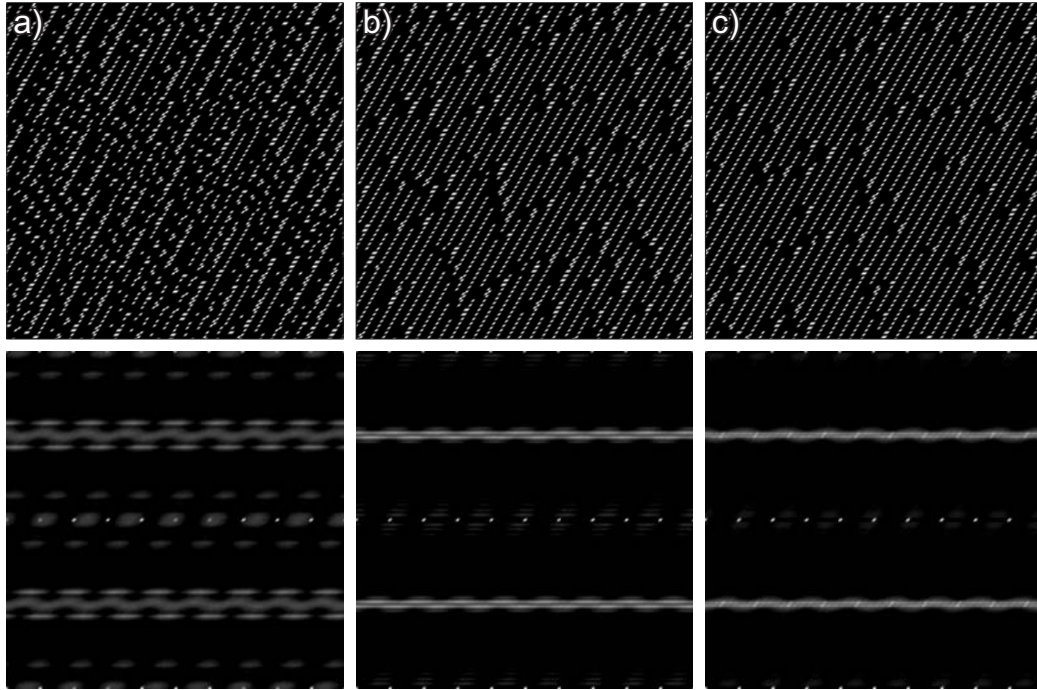


Abbildung 5.49: Für verschiedene Dichten von Spiegeldomänen sind erzeugtes Gitter und simuliertes Beugungsbild dargestellt – von links nach rechts: a) 1 b) 15 und c) 25 (5×2) -Zellen im Mittel. Die Gaußverteilung für die Länge der ungespiegelten (5×2) -Bereiche ist um den Faktor 8 (5×2) -Zellen, die Gaußverteilung für die Spiegeldomäne um den Faktor 2 (5×2) -Zellen verbreitert. Die Länge der Spiegeldomänen ist im Mittel 3 (5×2) -Zellen.

notwendige Breite der Verteilung, die deutlich kleiner sein muss als die mittlere Länge.

In Abb. 5.51 wird die mittlere Breite der Spiegeldomänen – im Modell rot markiert – variiert. Kürzere Abschnitte sind dabei zu bevorzugen. Wird die Länge der Spiegeldomänen in 2-fach Richtung vergleichbar mit den Längen der ungespiegelten Bereiche, so spaltet der Streifen in längliche Streifen auf.

In Abb. 5.52 wird die Breite der Längenverteilung der Spiegeldomänen verändert. Das Ergebnis ist, dass eine möglichst breite Verteilung um den schon geringen Mittelwert am besten einen gleichmäßigen Verlauf der wellenartigen Modulation erzeugt.

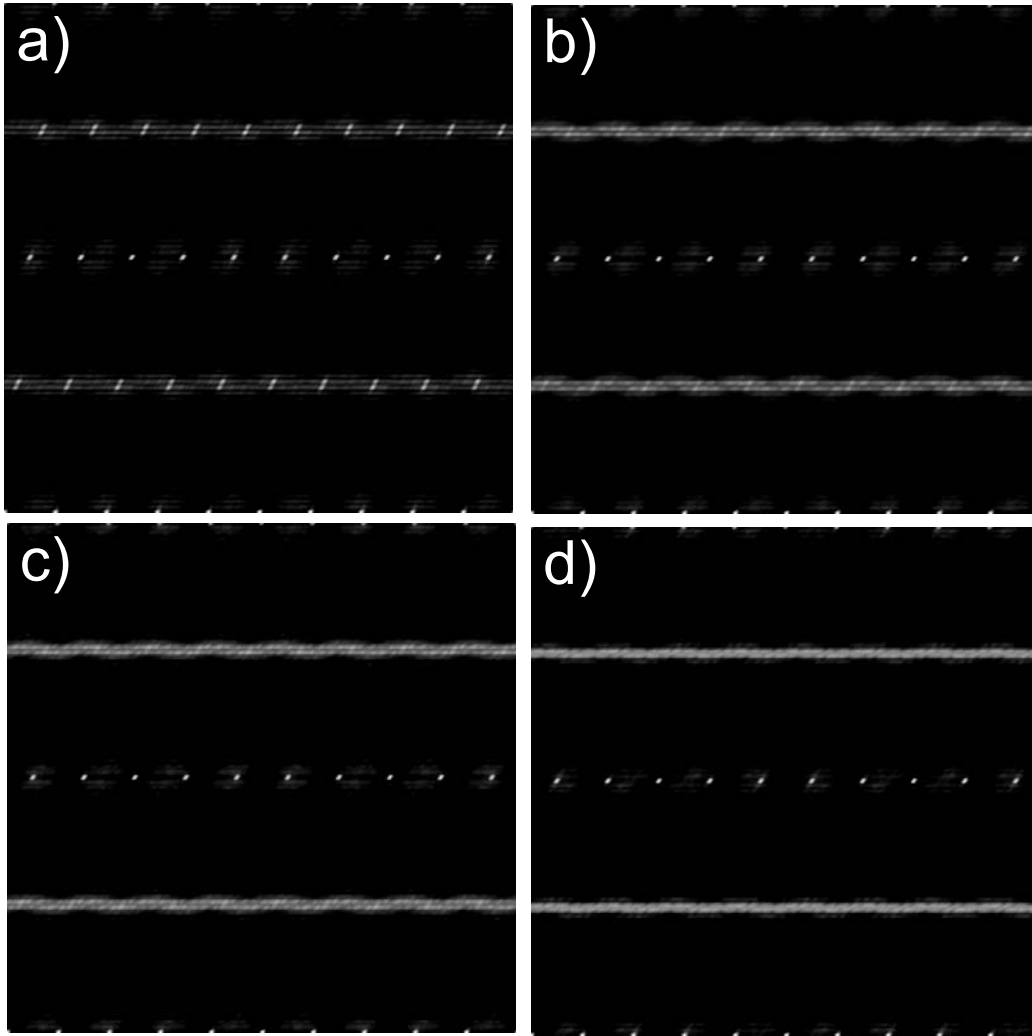


Abbildung 5.50: Untersucht wird der Einfluss der Längenverteilung der ungespiegelten Domänen auf das simulierte Beugungsbild mit Spiegeldomänen. Die Längen der einen Spiegeldomänenrichtung wird auf 20 (5×2) -Zellen im Mittel festgelegt. Die Breite der Gaußverteilung wird pro Bild variiert. In a) ist die Länge auf 20 (5×2) -Zellen festgelegt, d.h. sie wird nicht variiert. Die Modulation ist schwach ausgeprägt und wird durch eine Aufspaltung der Reflexe auf 50 % überlagert. In b) ist die Breite der Verteilung 5 in c) auf 10 (5×2) -Zellen festgelegt. Dies entspricht deutlicher den Gegebenheiten im echten Beugungsbild. Wird die Breite wie in d) mit 20 (5×2) -Zellen zu groß, so wird die Modulation schwächer und es bildet sich ein breiter Streifen aus.

Die Länge der Spiegeldomänen entgegengesetzter Orientierung ist für alle Bilder mit mittlerem Wert von 2 (5×2) -Zellen bei einer Gaußverteilung der Breite 3 (5×2) -Zellen festgelegt.

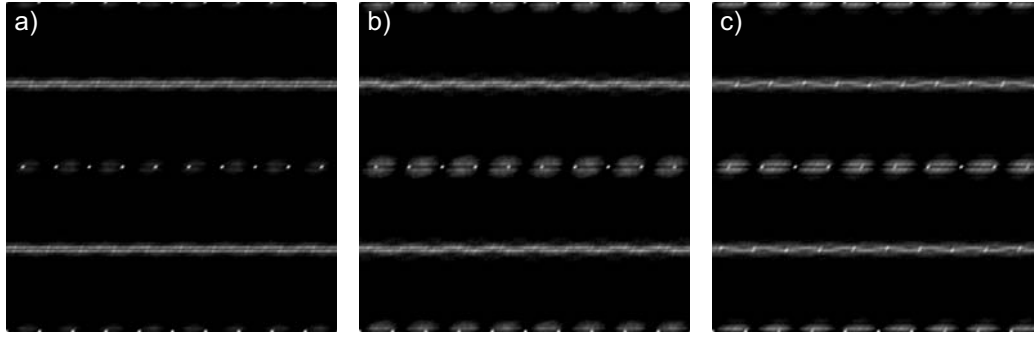


Abbildung 5.51: Die mittlere Länge der Spiegeldomänen in den einzelnen simulierten Beugungsbildern ist variiert: a) 1 (5×2) -Zelle b) 5 (5×2) -Zellen und c) 10 (5×2) -Zellen.

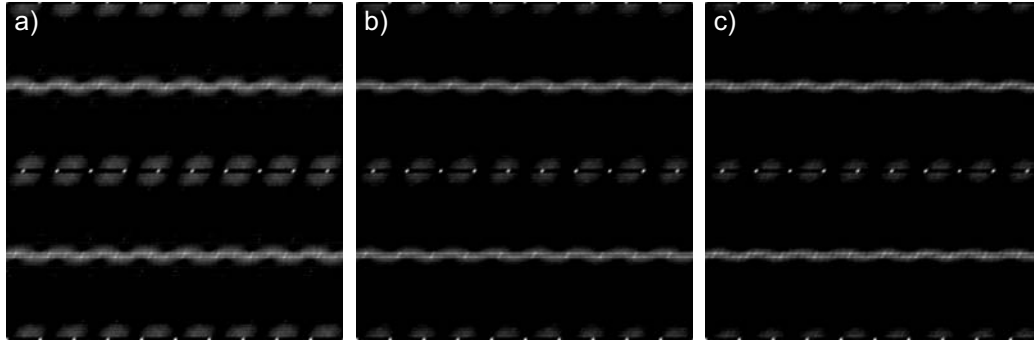


Abbildung 5.52: Die Breite der Längenverteilung der gespiegelten Bereiche wird von a) bis c) von 0-2 (5×2) -Zellen um den Mittelwert von 3 (5×2) -Zellen variiert.

Einfluss der Domänenform

Wie in Abschnitt 6.4, Seite 143 diskutiert, gleicht sich die Ausbreitung in 5-fach Richtung der Ausbreitung in 2-fach Richtung mit steigender Temperatur ab etwa 500 °C an, die Form der Domänen ändert sich von länglichen Rechtecken hin zu Kreisen. Da sich die wellenartige Modulation der Streifen der (5×2) -Phase mit steigender Temperatur stärker ausprägt, ist es interessant die Form der (5×2) -rekonstruierten Domänen in der Simulation zu berücksichtigen. Der gerade Rand entlang der 5-fach Richtung bei der bisher verwendeten Simulation entspricht dabei einer Domänenform bei einer sehr hohen Temperatur – idealisiert dem Rand eines sehr großen Kreises. Um zu überprüfen, ob die Domänenform die Ordnung der goldinduzierten Domä-

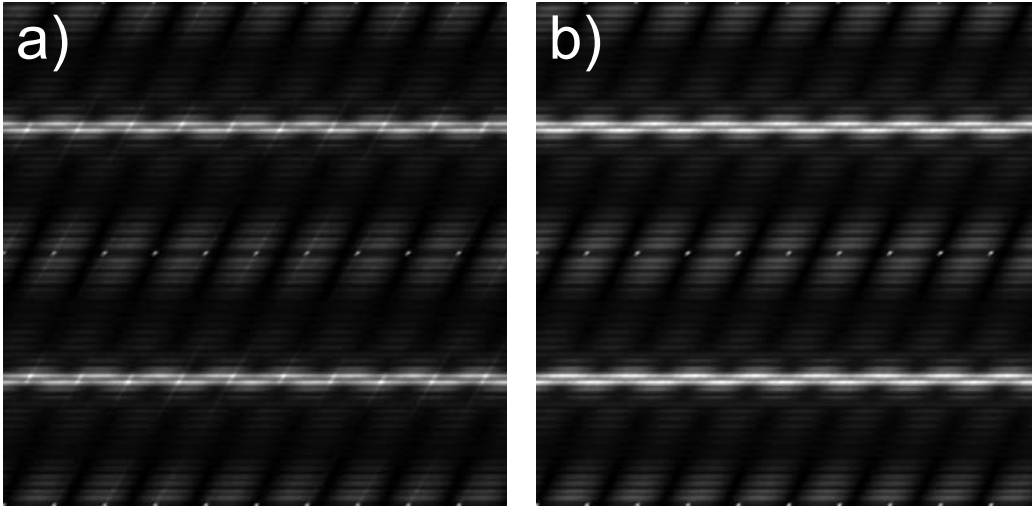


Abbildung 5.53: Ausführung der Simulation mit Spiegeldomänen (siehe Abb. 5.47) für a) glatten Rand entlang der 5-fach Richtung bzw. b) mit zufälligen Versatz von bis zu 50 (5×2) -Zellen in 2-fach Richtung für jede Reihe. Qualitativ ändert sich bis auf eine leichte Glättung der Modulation nichts.

nenwände aus Spiegeldomänen (Abschnitt 5.2.9, Seite 74) vorgibt, wurde in Vergleichssimulationen die Form des Domänenrandes gestört. Einmal wurde jede Reihe zufällig mit einer Wahrscheinlichkeit von 50% um eine Gitterkonstante entlang der 2-fach Richtung verschoben, ein anderes Mal wurde jede Reihe massiv bis zu 50 Gitterkonstanten – mit einer gleichmäßigen Zufallsverteilung für die Größe der Verschiebung – entlang der 2-fach verschoben. Das Ergebnis ist in Abb. 5.53 zu sehen: Ein möglichst glatter Rand entlang der 5-fach ist für die Modulation der Streifen nicht notwendig. Zwingende Voraussetzung ist allein eine Verteilung der Längen in 2-fach Richtung um einen Mittelwert herum.

5.2.13 Diskussion der Simulationsergebnisse

Die beste Simulation der wellenartigen Modulation läuft über den Ansatz mit Spiegeldomänen. Eine weitere positive Eigenschaft dieses Ansatzes ist, dass trotz der unterschiedlichen Längen der zwei Spiegeldomänen, die Modulation symmetrisch ist. Die "abfallenden" und "ansteigenden" Flanken der Welle erscheinen mit derselben Intensität. Also lässt sich aus dieser Symmetrie

nicht zwingend der Schluss ziehen, dass beide Spiegeldomänen mit derselben Häufigkeit auf der Oberfläche vertreten sind.

Problematisch ist die Wellenlänge der erzeugten Modulation, die sich von der experimentell gemessenen mit 25% zu 20% deutlich unterscheidet. Die Wellenlänge kann im gewissen Rahmen durch eine feinere Auflösung des Gitters moduliert werden, da sie wie in Abb. 5.48 empfindlich von der Position des verwendeten Markers abhängt.

Ein einfaches Modell mit Marker in einer Zelle ist offensichtlich nicht ausreichend, um die Spiegeldomänen im Experiment zu beschreiben. Es ist zu berücksichtigen, dass die Adatome im Experiment die benachbarten Merkmale der 2-fach Richtung sowohl elektronisch erhöhen, als auch lateral leicht verschieben. Ebenso deutet sich im STM-Bild an, dass die Merkmale der 2-fach Richtung der benachbarten Reihen durch die Existenz einer Spiegeldomäne ebenfalls modifiziert werden (siehe Abb. 5.14). Weiterhin ist evtl. ein unterschiedlicher Goldanteil in den (5×2) -rekonstruierten Bereichen zu berücksichtigen (siehe Abschnitt 5.2.9). Trotz der unterschiedlichen Wellenlänge in der Simulation ist das Modell mit den Spiegeldomänen das passendste Modell mit entsprechender Unterstützung von STM-Aufnahmen (siehe Abschnitt 5.2.9).

5.3 $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion

Diese Rekonstruktion wurde zum ersten Mal von Bishop und Rivière[9] beschrieben. Sie ist eine Vertreterin der häufigen adsorbatinduzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktionen auf der Silizium(111)-Oberfläche. Dabei ist die Einheitszelle der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion um 30° gegenüber den Hauptrichtung dieser Oberfläche gedreht. Der wesentliche Unterschied zu anderen $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktionen ist die Existenz von deutlich sichtbaren Domänenwänden, die selbst bei kleinen $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereichen – Größenordnung $50 \text{ \AA} \times 50 \text{ \AA}$ – gebildet werden und wie in Abb. 5.54 hell erscheinen.

Nach Falta et al.[20] handelt es sich bei den Domänenwänden um Spiegeldomänen – die Trimere, die die Wand bilden, sind zu denen innerhalb der

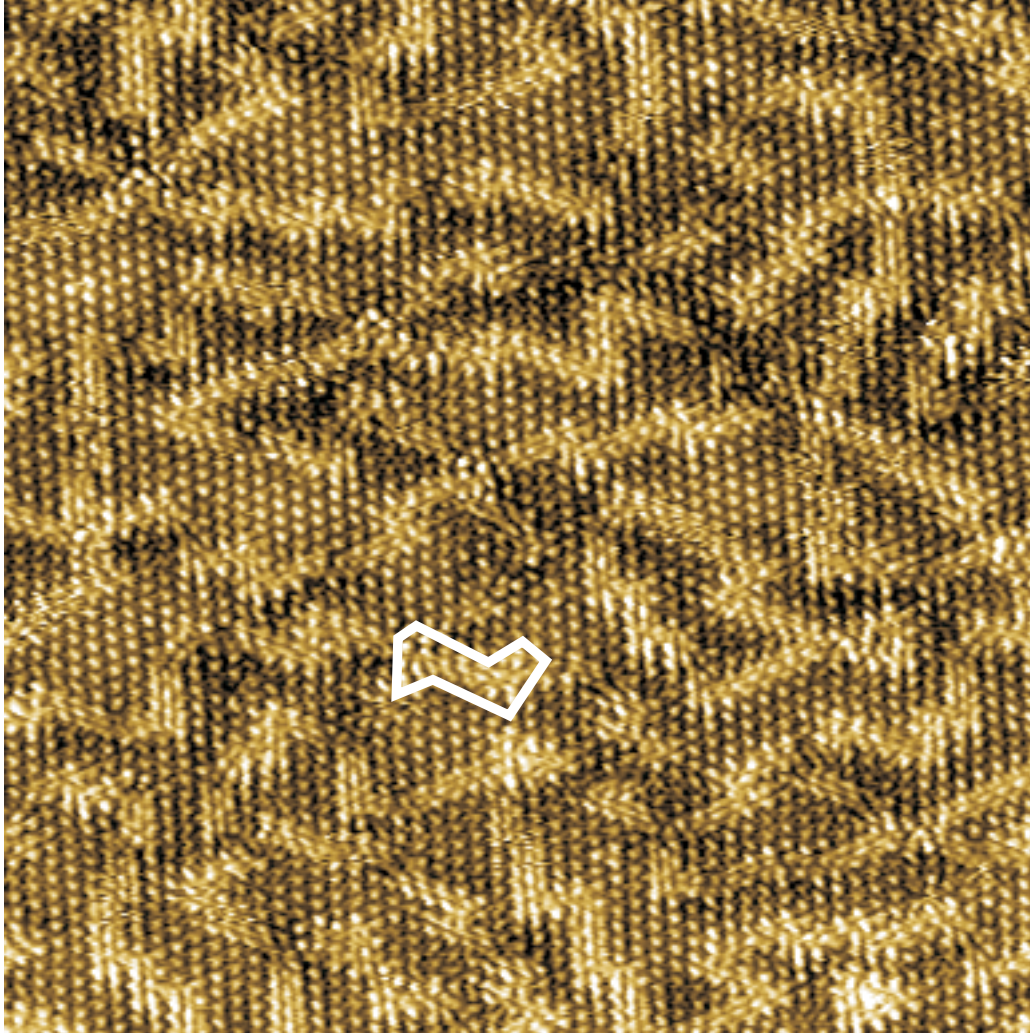
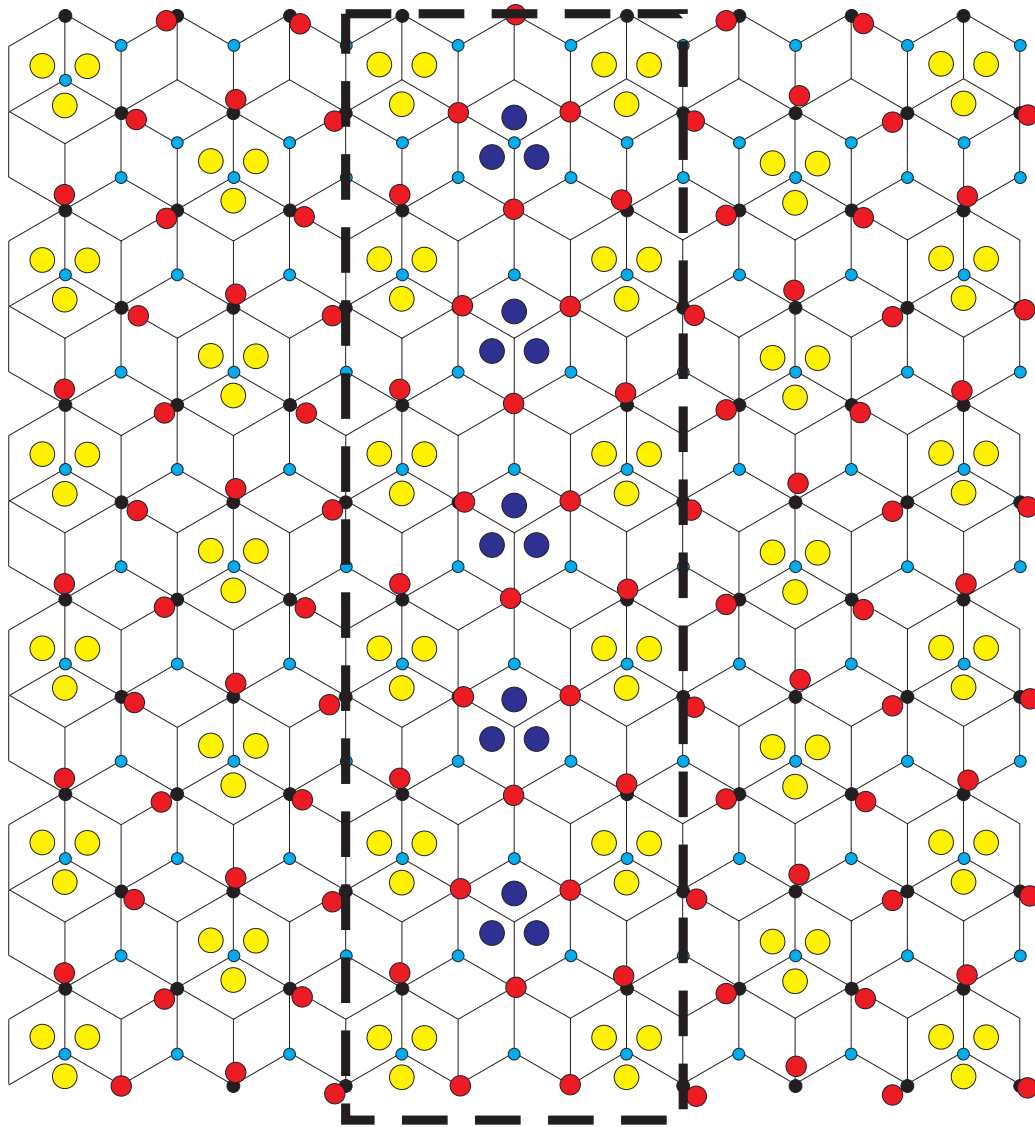


Abbildung 5.54: $380 \text{ \AA} \times 380 \text{ \AA}$ großer Ausschnitt aus einer bei $600 \text{ }^\circ\text{C}$ präparierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Fläche. Die dunkler erscheinenden Bereiche sind die $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Domänen, die durch die heller erscheinenden Domänen abgetrennt werden. Die einzelnen Merkmale innerhalb der Domänen sitzen im Abstand $\sqrt{3}$ Gitterkonstanten. Ein Teil der Domänenwände ist mit weißem Rand markiert. ($-0,25 \text{ V}$; $0,35 \text{ nA}$)



- Au-Lage 1 in Trimeren
- Au-Lage 1 in gespiegelten Trimeren
- Si-Lage 2 • Si-Lage 3 • Si-Lage 4

Abbildung 5.55: Modell der goldinduzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion nach Falta et al.[20]. Die oberste Lage des Substrats ist abgetragen. Goldatome bilden Trimere im Abstand von $\sqrt{3}$ Gitterkonstanten innerhalb der Domäne auf T_4 Positionen, d.h. über Siliziumatomen der vierten Lage. Die Trimere können nicht mit dem STM aufgelöst werden können und erscheinen als eine Erhebung. Eine höhere Golddichte wird in der mit einer gestrichelten Linie markierten Domänenwand erreicht, in der gespiegelte Trimere auf H_3 Positionen – zwischen Atomen der zweiten Lage – eine höhere Packungsdichte an Goldatomen erlauben.

Domäne gespiegelt (siehe Abb. 5.55). Dies führt zu einer Phasenverschiebung benachbarter Domänen um eine Gitterkonstante. Das Modell geht dabei davon aus, dass die oberste Lage des Substrats abgetragen wird[75].

Die Dichte der Domänenwände in der $\alpha-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ nimmt mit steigender Goldbedeckung zu[59], bis sich bei entsprechender Temperatur entweder die $\beta-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ bzw. die (6×6) -Phase bildet. Die Qualität der Ordnung der (5×2) -Phase mit wellenartige Modulation nimmt steigender Temperatur zu (siehe Abschnitt 5.2.3, Seite 55). Deshalb liegt es nahe zu postulieren, dass die Ordnung der Domänenwände in der $\beta-(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ temperaturabhängig ist. Dabei muss angemerkt werden, dass sich die besser geordnete Phase – (6×6) -Phase – nicht bei hohen Temperaturen bildet, sondern bei einer niedrigeren Temperatur um 300 °C[59].

Kapitel 6

Dynamik des Wachstums der (5×2) -Phase

6.1 Keimbildung der (5×2)

Wie aus Literatur und eigenen Messungen ersichtlich, bildet sich die (5×2) -Rekonstruktion bevorzugt an Stufenkanten, wobei die Ausrichtung parallel zu den Stufenkanten favorisiert ist [29]. Da die oberste Lage des Siliziumsubstrats bei der Bildung aufgelöst und nur ein Teil (1,08 - 1,28 ML[87] und eigene Messungen siehe Abschnitt 6.2) in die (5×2) -Rekonstruktion eingebaut wird, muss ein erheblicher Anteil Silizium abtransportiert werden, der zum Inselwachstum führt[29]. Diese Inseln sind eine Doppellage höher als die benachbarten (5×2) -rekonstruierten Bereiche[77]. Da an einer Stufe das abtransportierte Silizium in die Erweiterung der Stufe über die untere Terrasse hinweg gesteckt werden kann, sieht es so aus, als ob die (5×2) -rekonstruierten Bereiche immer auf der oberen Terrasse an einer Stufe wachsen. Wie in Abb. 6.2 zu sehen, findet das Wachstum der (5×2) -rekonstruierten Bereich in 2-fach Richtung der Rekonstruktion statt, was zu einer makroskopischen Aufrauung der Stufenkanten führt, die im Bild grün markiert ist. Ist die Temperatur hoch genug, können die auftreffenden Goldatome auf der Oberfläche diffundieren, bis sie auf eine Stufe treffen. Wie in Abb. 6.3 zu sehen, sind die rekonstruierten Bereiche an der Stufenkanten

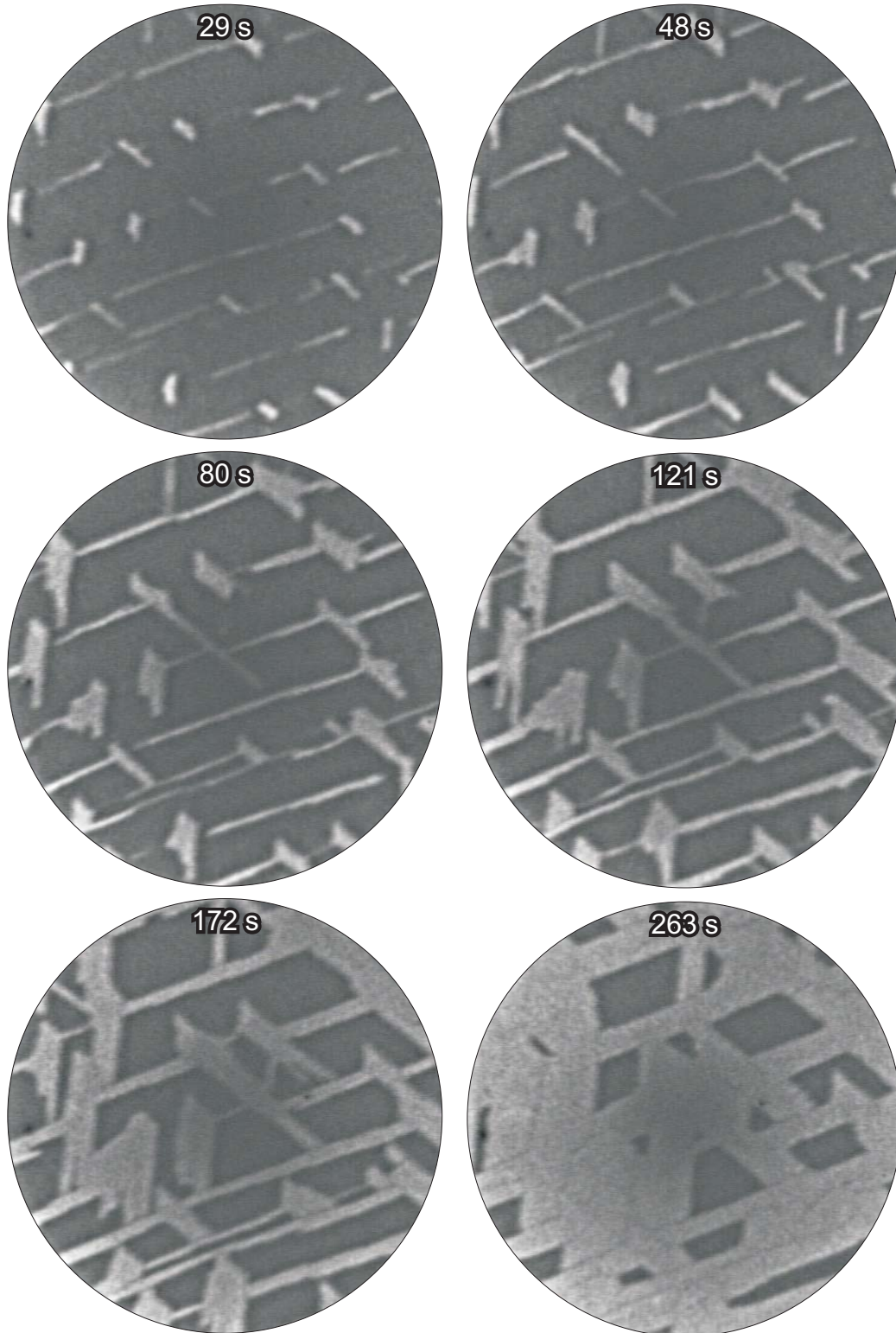


Abbildung 6.1: Dargestellt ist die zeitliche Entwicklung der (5×2) -rekonstruierten Domänen im Hellfeld eines LEEMs. Die Präparationstemperatur war 650°C , die Aufdampfrate 1 ML Au pro 10 Minuten. Der Bildausschnitt ist jeweils $4\ \mu\text{m}$ groß. Die (5×2) -rekonstruierten Bereiche sind hell, die (7×7) -rekonstruierten Bereiche der Si(111)-Oberfläche dunkel. Die Stufen verlaufen leicht schräg zur Horizontalen.

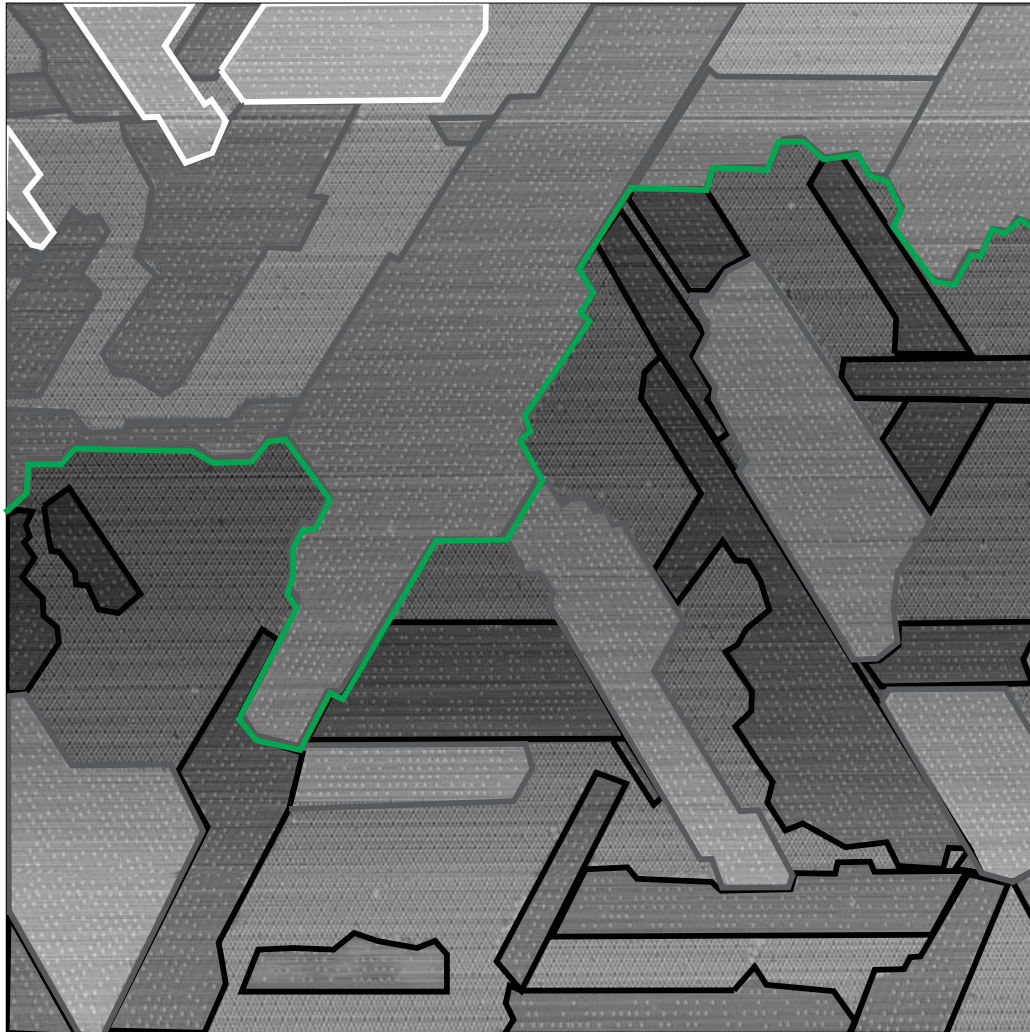


Abbildung 6.2: Bild einer bei 380 °C mit Gold präparierten Oberfläche. Es ist eine deutliche Aufrauung der Oberfläche zu erkennen. Die (5×2) -rekonstruierten Bereiche sind je nach Höhe der Bereiche schwarz, grau bzw. weiß markiert. Nicht markierte Bereiche sind (7×7) -rekonstruierte Bereiche der reinen Si(111)-Oberfläche. Die (5×2) -rekonstruierten Bereiche wachsen in die (7×7) -rekonstruierten Bereiche rein bzw. bilden (5×2) -rekonstruierten Inseln auf den Terrassen, sofern lokal genügend Siliziumatome durch die Auflösung der (7×7) -rekonstruierten Bereiche frei werden. (5×2) -rekonstruierte Bereiche, die auf eine Stufe treffen wachsen über diese hinaus. Die Stufe verläuft hier horizontal auf etwa halber Höhe des Bildes und ist grün markiert.
(2000 Å \times 2000 Å; -1,7 V; 0,8 nA)

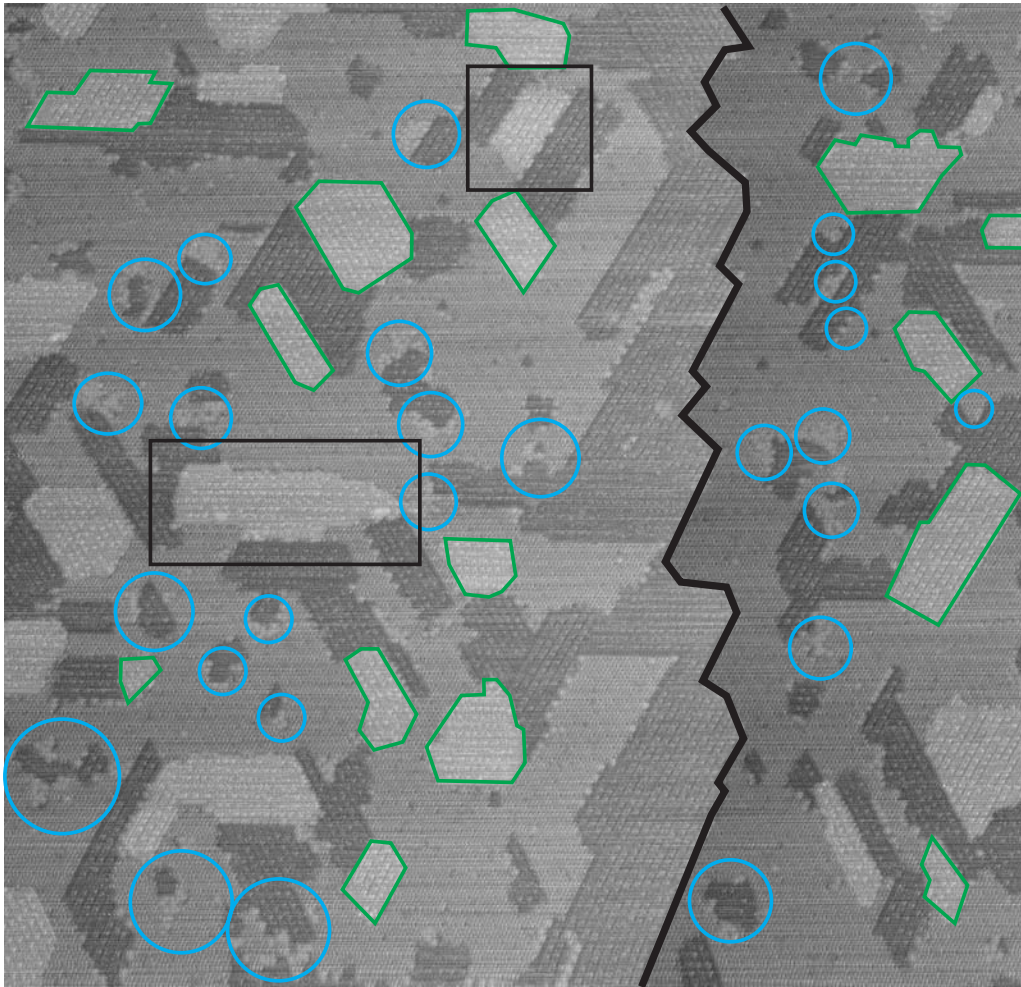


Abbildung 6.3: $185 \text{ nm} \times 175 \text{ nm}$ großes Bild einer bei 400°C mit Gold präparierten Oberfläche. Die durch die (5×2) -rekonstruierten Bereiche verformte Stufe – siehe auch Abb. 6.2 verläuft – schwarz markiert – senkrecht in der rechten Hälfte durch das Bild. Die exemplarisch grün eingerahmten (5×2) -Domänen liegen auf Inseln, die eine Stufe höher als die Umgebung sind. Diese sitzen vermehrt, aber nicht ausschließlich am Ende einer 2-fach Richtung der (5×2) -Domänen. Dies ist ein Ergebnis der stark erhöhten Diffusion in 2-fach Richtung bei hohen Temperaturen[32]. Mit schwarzem Kasten versehen sind die Inseln, die offensichtlich nicht am Ende einer 2-fach Richtung liegen. Es ist anzunehmen, dass eine deutliche Diffusion der Siliziumatome über den Rand der (5×2) -Domänen in 5-fach Richtung existiert, da auch dort Inseln liegen (mit schwarzem Kasten markiert). Mit blauen Kreisen markiert sind Siliziumanhäufungen, die nicht zur Bildung von Inseln geführt hat. Die dunkler als die unmittelbar benachbarten erscheinenden (5×2) -rekonstruierten Bereiche werden bei der Siliziumbedeckungsermittlung als Löcher bezeichnet. Die niedrigere Höhe im STM-Bild ist kein hinreichender Grund für die Annahme einer niedrigeren Siliziumbedeckung in der (5×2) -Rekonstruktion als in der (7×7) -Rekonstruktion.
 (-0,8V; -0,5nA)

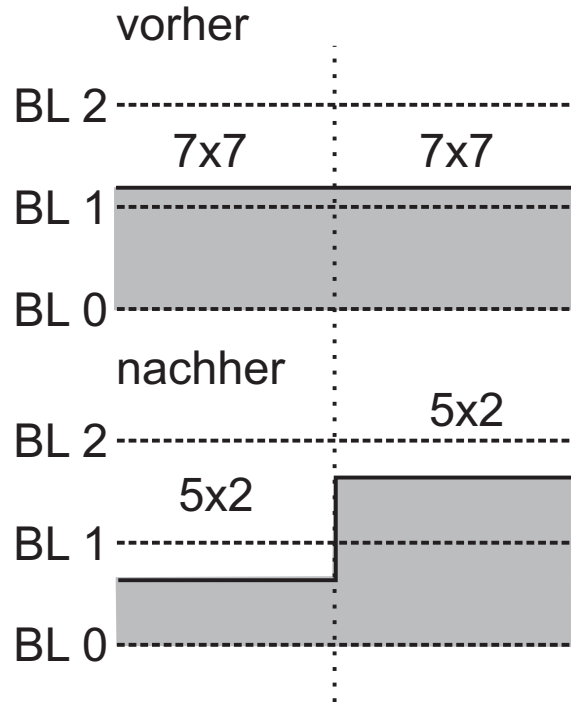


Abbildung 6.4: Schematischer Querschnitt durch eine (7×7) -rekonstruierte Fläche, die durch Goldadsorption in (5×2) -rekonstruierte Bereiche umgewandelt wird. Die Bildung der (5×2) -rekonstruierten Flächen führt zu einer Freisetzung von Siliziumatomen, die gegenüber dem Niveau der (7×7) -rekonstruierten Bereiche zu einem Loch/Insel Paar führt. Die Bilayer des Substrats und der Insel sind mit BL bezeichnet und durchnummeriert.

deutlich breiter, als die Bereiche auf den Terrassen. Dies lässt sich damit erklären, dass sowohl die Goldatome von der oberen als auch unteren Terrasse an der Stufe in die Rekonstruktion eingebaut werden, wobei der anfallende Überschuss sofort in die Erweiterung der oberen Terrasse gesteckt wird, wie schon aus HT-STM Aufnahmen von Hasegawa et al.[29] ersichtlich.

6.2 Bestimmung des Siliziumanteils

Die Bildung der (5×2) -rekonstruierten Bereiche führt zur Auflösung der (7×7) -rekonstruierten Bereiche, aus denen sie sich bildet – schematisch in Abb. 6.4 dargestellt. Der Anteil an Silizium in den (5×2) -rekonstruierten

Bereichen ist dabei deutlich kleiner[29]. Dieses Silizium muss auf der restlichen Oberfläche verbaut werden. Bei höheren Temperaturen ab etwa 500 °C[29] sind die Siliziumatome mobil genug, um an Stufenkanten zu gelangen und eingebaut zu werden, während sie bei Temperaturen deutlich unter 500 °C eine dafür zu geringere Reichweite haben. Das führt dazu, dass die freiwerdenden Siliziumatome (5×2) -rekonstruierte Inseln mit der Höhe einer Doppellage bilden, die den (5×2) -rekonstruierten Flächen in der Ausgangsebene direkt benachbart sind.

6.2.1 Verfahren von Shibata et al.

Von Shibata et al.[75] ist eine Methode entwickelt worden, die geeignet ist, den Siliziumanteil einer adsorbatinduzierten Rekonstruktion zu bestimmen, wenn deren Siliziumanteil geringer als die der reinen Oberfläche ist. Von Vorteil ist hierbei, dass der Bedeckungsanteil des Adsorbat ebensowenig eine Rolle spielt wie die Skalierung der dafür verwendeten Realraumbilder – hier Rastertunnelmikroskopiebilder.

Dieses Verfahren ist im Rahmen dieser Arbeit von der goldinduzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion auf die (5×2) -Rekonstruktion übertragen und erweitert worden. Damit berücksichtigt die Methode nun, dass sich im Fall der (5×2) -Rekonstruktion Inseln und Löcher nicht eindeutig einander zuordnen lassen können, und behandelt ebenso die Existenz von Stufen in einem Bild.

Zur Berechnung des Siliziumanteils in der (5×2) -Rekonstruktion kann folgende Rechnung aufgestellt werden, die von Teilchenerhaltung ausgeht – Θ -Größen bezeichnen die Flächendichte von Siliziumatomen, wobei sie für das Ergebnis problemlos mit einer Bedeckungsangabe in ML ersetzt werden können; A -Größen bezeichnen Flächen:

$$\Theta_{(7 \times 7)} \cdot (A_{Loch} + A_{Insel}) = \Theta_{(5 \times 2)}(A_{Insel} + A_{Loch}) + \Theta_{BL} \cdot A_{Insel} \quad (6.1)$$

Wobei $\Theta_{(7 \times 7)}$ die Flächendichte der (7×7) -rekonstruierten Bereiche von 2,08 Atome/Einheitszelle des Substrats, $\Theta_{(5 \times 2)}$ die herauszufindende Flächen-

dichte der (5×2) -rekonstruierten Bereiche und Θ_{BL} die Flächendichte einer Doppellage von 2 Atomen/Einheitszelle bezeichnet. A_{Loch} steht für die Fläche eines Loches und A_{Insel} für die Fläche einer Insel.

Nach Umformung der Gleichung Gl. 6.1 ergibt sich in Übereinstimmung mit der Rechnung für die goldinduzierte $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$:

$$\Theta_{(5 \times 2)} = \Theta_{(7 \times 7)} - \frac{\Theta_{BL}}{1 + A_{Loch}/A_{Insel}} \quad (6.2)$$

Also wird für die Auswertung des Siliziumanteils in der (5×2) -Rekonstruktion allein das skalenlose Verhältnis der Insel- und Lochflächen benötigt.

6.2.2 Auswertung

Für die Auswertung wurden alle fünf verwendeten Bilder zweier unterschiedlicher Präparationen – typische Größe $200 \text{ nm} \times 200 \text{ nm}$ – wie in Abb. 6.5 zu sehen per Hand markiert, so dass Inseln bzw. Löcher auf unterschiedlich hohen Terrassen jeweils mit demselben Grauwert versehen sind. Dabei ist zu sehen, dass sich keine eindeutige Zuordnung von Inseln zu Löchern ergibt. Also ist es nicht möglich, Insel- und Lochfläche von zugehörigen Insel/Lochpaaren einzeln auszuwerten. Deswegen muss die Methode so erweitert werden, dass die Flächen über größere Bereiche ermittelt werden, idealerweise über das gesamte Bild. Dies ist, wie an Gl. 6.2 zu sehen, kein Problem, da es nur um ein Verhältnis der Loch- und Inselflächen geht.

6.2.3 Einfluss von Stufen auf die Auswertung

Es ist in Abb. 6.5 zu sehen, dass die Auswertung der Flächen an Stufen problematisch ist.

In der Nähe von Stufen gibt es keine Inseln, d.h. Siliziumatome, die zu Stufen diffundieren können, wachsen an diesen an und verlängern diese über die untere Terrasse hinaus[29]. Dies lässt sich damit belegen, dass keine (5×2) -rekonstruierte Bereiche direkt an der Unterseite der Stufenkante wachsen (Abb. 6.3).

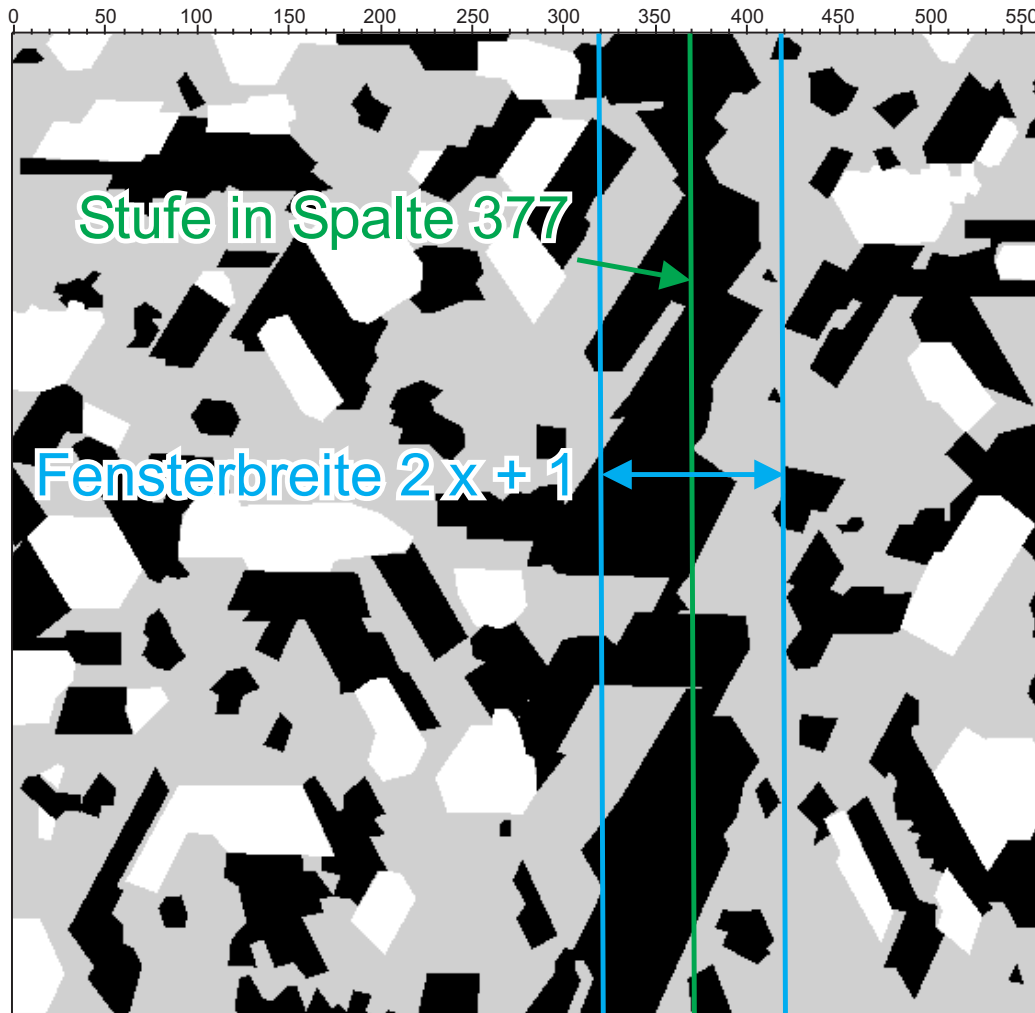


Abbildung 6.5: Für die Auswertung per Hand markiertes Bild (siehe Abb. 6.3). Alle (7×7) -rekonstruierte Bereiche sind mit einem Grauton unterlegt. Inseln auf der oberen Terrasse links und der unteren Terrasse rechts sind weiß hervorgehoben. Alle innerhalb von (7×7) -rekonstruierten Bereichen gebildeten (5×2) -Bereiche sind schwarz als Löcher markiert. Dies gilt ebenso für die großen (5×2) -rekonstruierten Bereiche entlang der Stufe rechts von der Mitte.

Für die Siliziumbedeckungsbestimmung (siehe Abb. 6.7) wird ein Teil des Bildes um die Stufe herum zwischen den blauen Markierungen nicht gewertet.

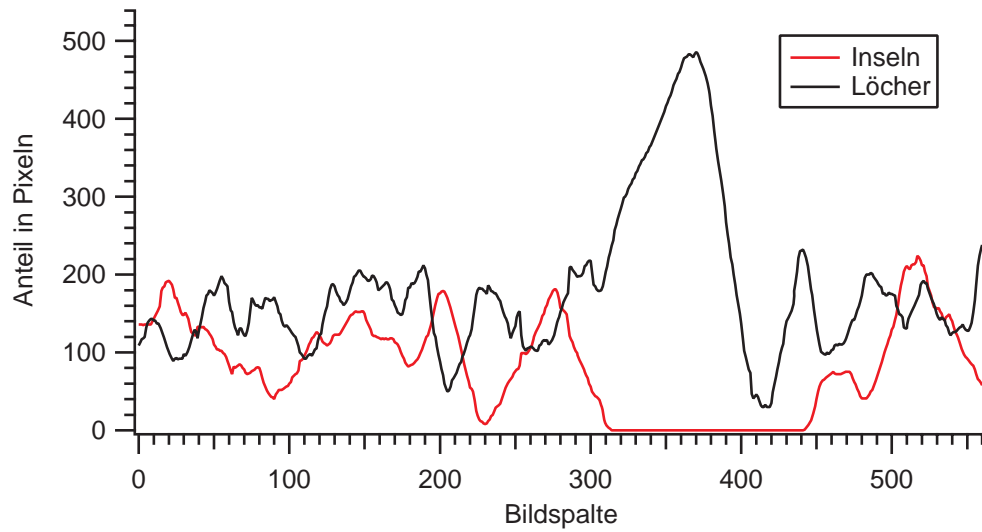


Abbildung 6.6: Aufgetragen ist der Anteil an Löchern bzw. Inseln pro Spalte in Bildpixel. Das scheinbare anti-zyklische Verhalten für Maxima und Minima der Löcher und Inselgrößen kann damit erklärt werden, dass eine Insel bzw. ein Loch den möglichen Platz für andere Inseln und Löcher einschränkt.

Ebenso ist zu sehen, dass sich auf der oberen Terrasse an einer Stufe (5×2) -rekonstruierte Bereiche bilden, die wesentlich größer als die Bereiche weiter weg von der Stufe ausfallen. Das freiwerdende Silizium wird direkt in die Erweiterung der oberen Terrasse über die untere Terrasse gesteckt, ein Extrembeispiel einer über die Stufenkante hinauswachsenden (5×2) -rekonstruierten Domäne ist in Abb. 6.2 zu sehen. Der Anteil an verbautem Silizium ist dabei derselbe wie für eine Insel. Es lässt sich allerdings im nachhinein – im statischen Fall – nicht mehr sagen, wie groß die Erweiterung der Stufe durch das freiwerdende Silizium gewesen ist. Dies kann durchaus eine Änderung der gemessenen Bedeckung von bis zu 0,2-0,3 ML ausmachen (s.u.).

Enthält ein Bild eine Stufe, so muss es für eine möglichst großflächige Auswertung so gedreht werden, dass diese Stufe horizontal bzw. senkrecht im Bild liegt. Als hier nicht verfolgte Alternative bietet sich an, Profile parallel zur Stufe durch das Bild zu legen. Für die Auswertung wurden bevorzugt Bilder wie Abb. 6.3 gewählt, in denen die Stufe senkrecht durch das Bild

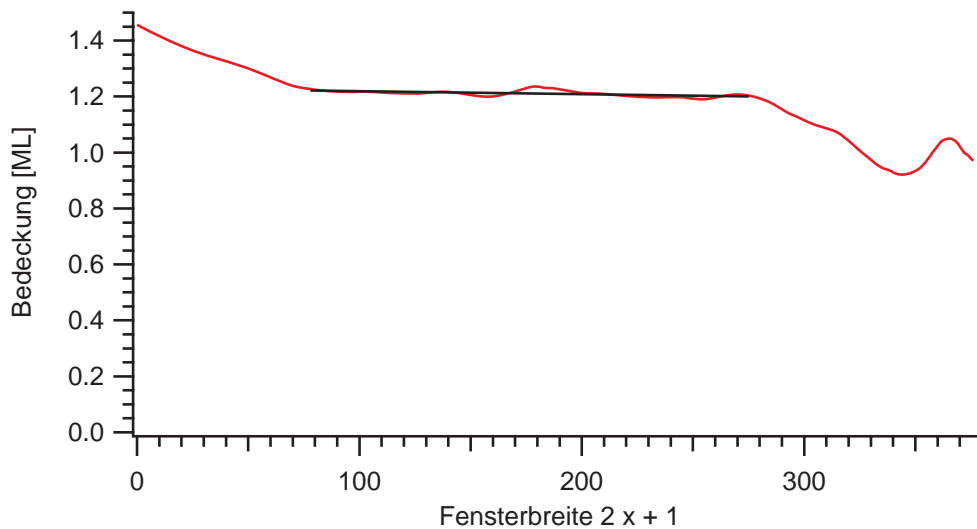


Abbildung 6.7: Die Siliziumbedeckung in Abb. 6.3 in Abhängigkeit von der Breite $2x+1$ des Fensters um die Stufe bei Spalte 377 (siehe Abb. 6.5 zur Erläuterung). Alle Spalten in diesem Fenster werden jeweils nicht für die Berechnung berücksichtigt. Der lineare Fit zur Bestimmung der Siliziumbedeckung ist schwarz eingezeichnet.

geht. Die Stufe ist zickzackförmig ausgefranst, da die jeweiligen (5×2) -Domänen an den Stufen unterschiedlich schnell wachsen[87]. Die Auswertung der Bedeckung wird, wie in Abb. 6.6 zu sehen, spaltenweise – also parallel zur Stufe – gemacht. Dabei wird pro Spalte der Anteil an Löchern und Inseln in Pixel dargestellt. Der Lochanteil im Bereich der Stufe ist dabei stark erhöht, der Inselanteil verschwindet wie oben dargestellt. Außerdem fällt auf, dass der Anteil der Löcher bzw. Inseln pro Spalte stark variiert. Es fällt ansatzweise auf, dass sich Maxima im Loch- bzw. Inselanteil abwechseln. Dies kann damit erklärt werden, dass sich Insel- und Lochbereiche gegenseitig ausschließen und jeweils einen großen Bereich einer Bildspalte einnehmen.

Um den Fehler in der Bedeckungsberechnung bei Existenz von Stufen zu kompensieren wurde ein Auswerteprogramm mit Igor Pro[92] erstellt. Die Stufe wird hierbei als der Mittelpunkt des inselfreien Bereiches gewählt (siehe Beispiel in Abb. 6.5). Die Siliziumbedeckung wird für das komplette Bild bestimmt. Danach wird sukzessive sowohl der Löcher- als auch der Inselanteil um die Stufe herum Spalte für Spalte in beide Richtungen aus der Wertung

herausgenommen. Wie in Abb. 6.7 zu sehen, ist die Bedeckung für das gesamte Bild inklusive der Stufe etwa 1,45 ML Si. Der Siliziumanteil sinkt bei Vergrößerung des nicht gewerteten Ausschnitts nach einer Fenstergröße von 2·80 Pixel entsprechend 2·28 nm auf etwa 1,25 ML ab. Dieser Bedeckungswert wird mit geringer Schwankung beibehalten, bis das ausgewertete Restbild zu klein geworden ist, um die Schwankungen der Löcher- bzw. Inselgrößen vernünftig durch Summierung zu glätten. Es ergibt sich aus dem Linienfit in Abb. 6.7 im stabilen Bedeckungsbereich eine Siliziumbedeckung von $1,23 \pm 0,003$ ML. Die leichte Steigung bewirkt einen zusätzlichen Fehler von maximal 0,003 ML für dieses Beispielbild.

6.2.4 Diskussion Fehlerquellen

Neben der Existenz von Stufen ist eine Fehlerquelle eine Häufung von Siliziumatomen auf den (7×7) -rekonstruierten Bereichen sein. Auch in diesem Fall fällt der Flächenanteil der Inseln geringer aus und die Siliziumbedeckung der (5×2) -Rekonstruktion wird wiederum überschätzt. In Abb. 6.3 sind mit blauen Kreisen markierte Ansammlungen von Siliziumatomen – wahrscheinlich Vorstufen von Inseln – zu sehen. Für ein Beispielbild ist der daraus resultierende Fehler mit maximal 0,09 ML abgeschätzt worden. Dazu ist angenommen worden, dass in den 3 % ungeordneten Bereichen auf der Fläche dieselbe Siliziumbedeckung wie in den 15 % Inseln enthalten ist. Der Lochanteil wurde mit 20,3 % bestimmt. Daraus ergibt sich eine Bandbreite von 1,23 ML bis 1,14 ML.

Ein weitere mögliche Fehlerquelle ist die Existenz von Inseln und Löchern auf der Ausgangsfläche. Diese könnten das Ergebnis massiv verfälschen, so dass mit großer Statistik gearbeitet werden muss. Dazu lässt sich anmerken, dass bei wiederholten Präparationen der reinen Ausgangsfläche nie solche Inseln oder Löcher zu beobachten waren. Die einzigen Abweichungen ergaben sich aus Bereichen der Domänengrenzen zwischen (7×7) -rekonstruierten Bereichen, die für die Auswertung unerheblich sind.

6.2.5 Diskussion

Der Mittelwert der Bedeckung für die ausgewerteten Bilder ergibt sich zu $1,28 \text{ ML} + 0,05 - 0,15 \text{ ML}$. Dieser fraktionale Wert – ungerade Anzahl von Adatomen pro Einheitszelle der (5×2) -Rekonstruktion – schließt nicht aus, dass es eine ganzzahlige Anzahl Siliziumatome in den (5×2) -Einheitszellen gibt. Der fraktionale Überschuss kann dabei in den ungeordneten Siliziumatomen (siehe Abschnitt 5.2.8) stecken.

Dieses Ergebnis bewegt sich am oberen Rand des Ergebnisses von Tanishiro et al.[87] von 1,08 bis 1,28 ML Si. Tanishiro et al. haben REM Bilder während des Wachstums aufgenommen und die Bewegung der Stufen bzw. Größe der (5×2) -Domänen an den Stufen registriert und aus diesem Verhältnis der Siliziumanteil in der (5×2) -Rekonstruktion ermittelt. Fehlerquelle könnte hierbei sein, dass die Diffusionslänge der Siliziumatome nicht groß genug ist, um an die Stufen zu gelangen. In diesem Fall wird der Siliziumanteil in der (5×2) -Rekonstruktion überschätzt. Die Temperatur von 650°C ist allerdings so groß, dass dieser Fehler ausgeschlossen werden kann. Weiterhin könnten Siliziumatome von der unteren Terrasse an die Stufe gelangen und so zu einer zu niedrigen Bedeckungsmessung führen. Diese Siliziumatome fehlen dann allerdings an der niedrigeren Stufe, so dass sich daraus im Mittel kein systematischer Fehler ergibt.

6.3 Präparationstemperaturabhängigkeit der Domänengröße

Wie in Abb. 6.8 zu sehen, sind die Reflexe der 5-fach Richtung im Beugungsbild bei niedrigen Temperaturen nicht rund, sondern elliptisch. Dies ist eine Folge der Diffusionsanisotropie der (5×2) -rekonstruierten Bereiche, die in 2-fach Richtung sehr viel stärker wächst als in 5-fach Richtung. Dies führt zu langgestreckten Domänen mit unscharfem Rand in 2-fach Richtung und glatten Rändern in 5-fach Richtung mit langgestreckter, rechteckiger Form. Bei hohen Temperaturen werden die Reflexe der (5×2) -Rekonstruktion im Beugungsbild rund, d.h. die Domänen werden rund, wie auch in unverfö-

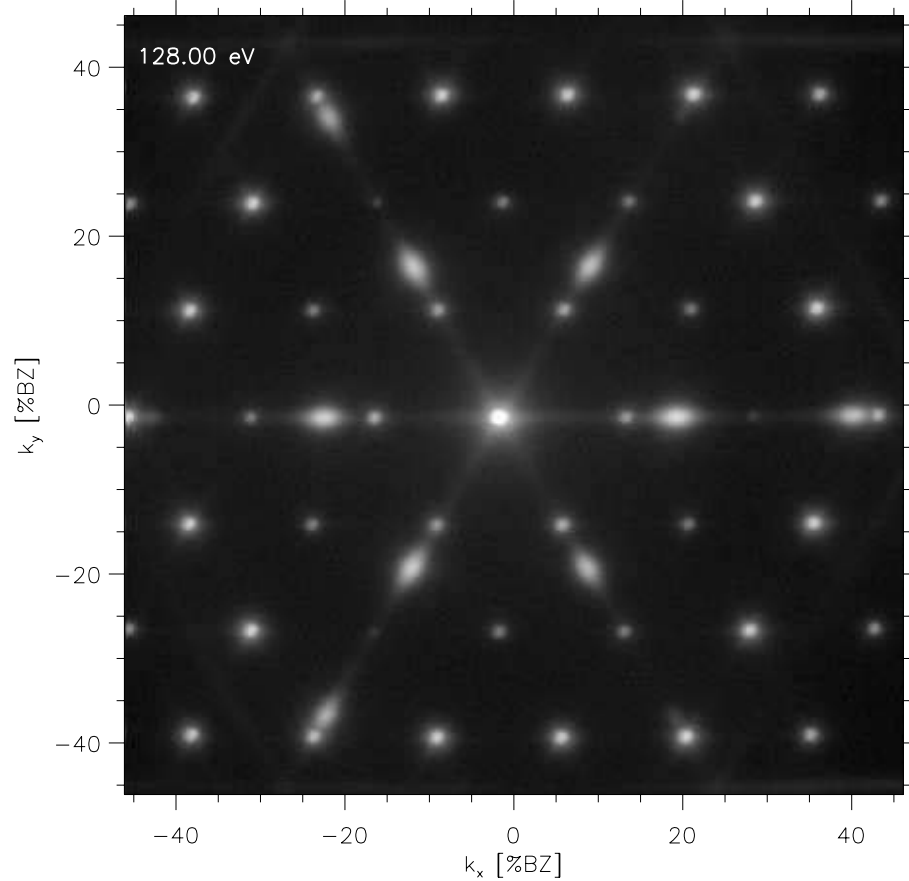


Abbildung 6.8: Ausschnitt aus einem Beugungsbild einer Si(111)-Oberfläche mit (5×2) -rekonstruierten Bereichen in Koexistenz mit der (7×7) -Phase. Als Folge der stark anisotropen Diffusion und damit Domänenform sind die Reflexe der Domänen elliptisch und nicht rund. Die elliptische Verzerrung ist dabei in Richtung der langsamer wachsenden 5-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion. (aus [93])

fentlichten LEEM Bildern von Meyer zu Heringdorf zu sehen. Dies schließt die Alternative aus, dass die (5×2) -rekonstruierten Domänen in beiden Richtung größer als die Transferweite des SPA-LEEDs werden und unterschiedliche Längen in verschiedenen Richtungen nicht mehr erfasst werden können.

Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Randenergie für Ränder einer (5×2) -Domäne zur benachbarten (7×7) -Domäne unabhängig von der Seite – entlang 2-fach bzw. entlang 5-fach Richtung – ist und das die Entwicklung der Domänen von der Überwindung einer Aktivierungsenergie in 5-fach Rich-

tung abhängig ist.

Dies ist in der Diplomarbeit von Christian Wiethoff[93] untersucht worden. Darin wurde eine Probe bei niedrigen Temperaturen (5×2)-rekonstruiert und bei steigenden Temperaturen getempert. Die Halbwertsbreiten in 5-fach Richtung wurden in einem Arrheniusplot aufgetragen und eine Aktivierungsenergie von $0,17\text{eV} \pm 0,1\text{eV}$ ermittelt.

Eine Interpretation der Aktivierungsenergie von $0,17\text{eV}$ ist eine Barriere für die Bewegung von Goldatomen in 5-fach Richtung über benachbarte Reihen, da der Materialtransport bei niedrigen Temperaturen hauptsächlich in 2-fach Richtung erfolgt (siehe Abb. 6.3, Seite 133).

6.4 Tempertemperaturabhängigkeit der Domänenengröße

Im Rahmen der Diplomarbeit von Christian Wiethoff[93] wurde überprüft, wie sich eine (5×2)-rekonstruierte Oberfläche verhält, wenn sie jeweils auf hohe Temperaturen gebracht und für einige Minuten bei dieser Temperatur "getempert" wird. Dazu wurde die Intensität der Reflexe aller drei Domänenrichtungen der (5×2) einzeln integral summiert und im Verhältnis zum Hauptreflex normiert. Wie in Abb. 6.9 zu sehen, bleibt das Verhältnis der Intensität aller drei Domänenrichtungen bis zu einer Temperatur von 500°C - 550°C weitgehend konstant. Ab dieser Temperatur – noch deutlich unter der Temperatur für eine Desorption von Gold von dieser Oberfläche, bzw. dem Phasenübergang von der (5×2)-Phase zu der (1×1)-Phase – wird eine Domäne auf Kosten der anderen beiden dominant. Da fertig präparierte Proben getempert worden sind, kann diese Dominanz nicht durch die bevorzugte Adsorption an Stufenkanten erzeugt worden sein. Ein Mechanismus, um dies zu erreichen wird im folgenden Abschnitt Abschnitt 6.5 über Domänenverdrängung vorgestellt.

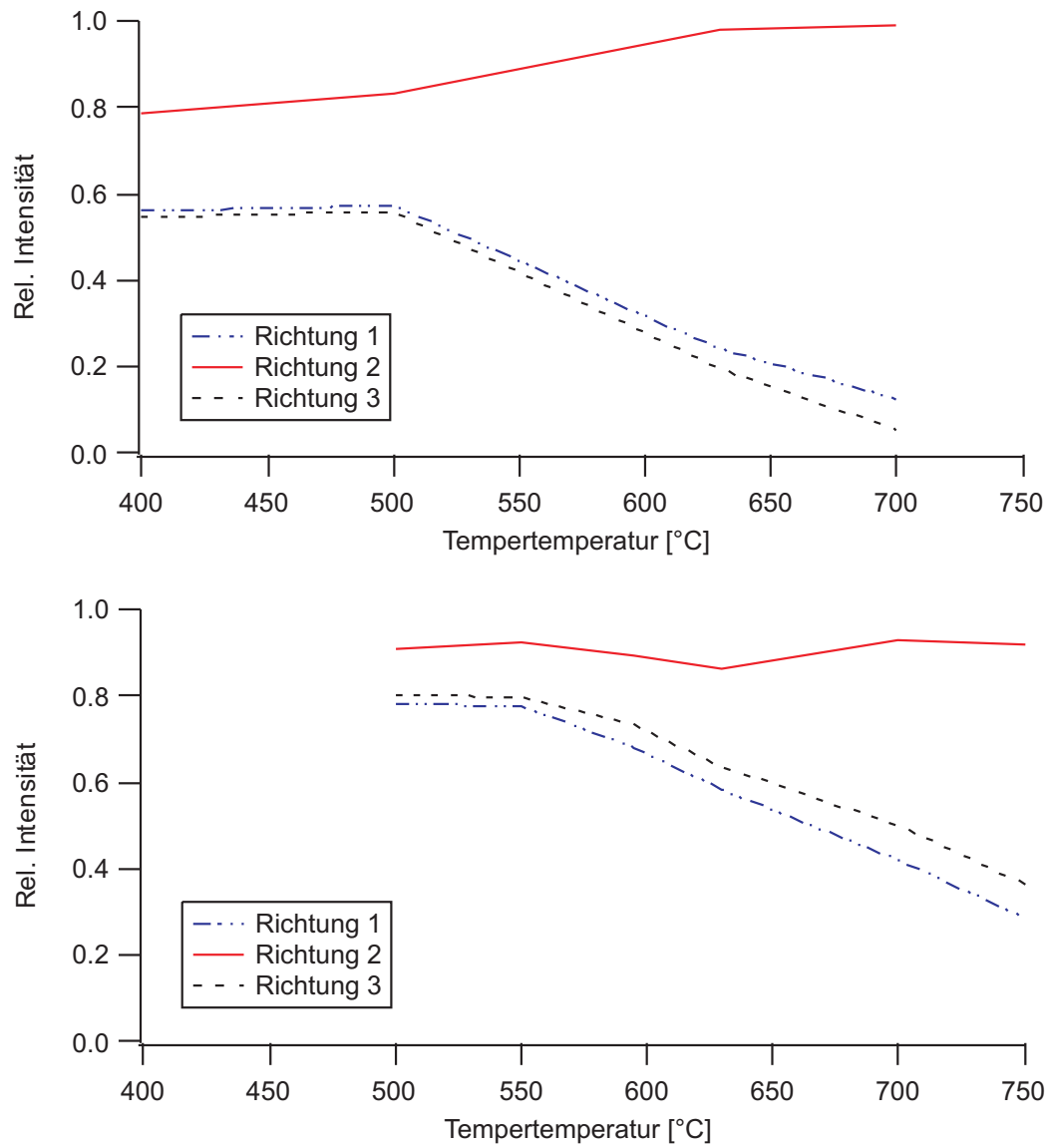


Abbildung 6.9: Zwei Proben wurden präpariert und bei aufsteigenden Temperaturen für jeweils einige Minuten gehalten. Dargestellt ist die integrale Intensität für die Reflexe verschiedener Domänenrichtungen der (5×2) -Rekonstruktion – normiert auf die Intensität des Hauptreflexes. (Aus [93])

6.5 Domänenverdrängung

6.5.1 Experimenteller Befund

Im normalen Fall wachsen (5×2) -Domänen so lange weiter, bis sie auf ein Hindernis wie eine Stufe oder eine andere Domäne treffen. Wie schon von Hasegawa et al.[30] in HT-STM Aufnahmen beobachtet, können (5×2) -Domänen von (5×2) -Domänen einer anderen Orientierung durchdrungen werden. Dabei wächst die durchdringende Domäne entlang ihrer 2-fach Richtung, bis sie auf eine andere Domäne einer anderen Rotationsrichtung trifft und sie entlang dieser Richtung umwandelt. Diese STM-Messungen wurden bei einer Temperatur von 500 °C gemacht. Bei dieser Temperatur wächst die Ausbreitung der Domänen in 5-fach Richtung stark an (siehe Abb. 6.9 in Abschnitt 6.4, Seite 143), was für eine erhöhte Beweglichkeit von Atomen in dieser Richtung spricht. Dieses Verhalten konnte in noch nicht veröffentlichten LEEM Messungen von F.-J. Meyer-zu Heringdorf für große Bereiche gezeigt werden. Dabei wurden die Aufnahmen jeweils abwechselnd von allen drei Domänenrichtungen einzeln gemacht und am Ende zu einem Bild eines Videos in Echtzeit vereinigt. Dies ist möglich, indem in der Brennebene nur ein Reflex einer Domänenrichtung der (5×2) -Rekonstruktion durchgelassen wird.

In [30] wird dieses Verhalten als rein diffusionsbedingt bezeichnet, die mit der viel höheren Diffusion entlang der Reihen erklärt wird. Allgemein ist dieses Verhalten nicht verständlich, da die einzelnen Domänen sich energetisch nicht voneinander unterscheiden sollten, auch wenn sie zu unterschiedlichen Rotationsrichtungen gehören.

Folgende allgemeine Beobachtungen konnten gemacht werden, wobei berücksichtigt werden muss, dass es sich bei den 20 beobachteten Ereignissen um eine geringe Statistik handelt:

- Domänen parallel zu einer Stufenrichtung werden nie durchstoßen.
- Durchstoßende Domänen werden selbst nie von anderen Domänen durchstoßen.

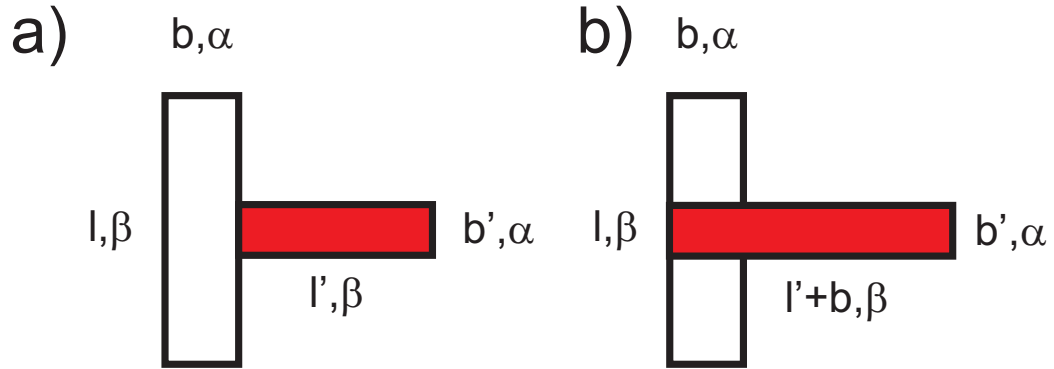


Abbildung 6.10: Schematisch gezeigt ist die Berührung zweier (5×2) -Domänen in a). b und l bezeichnen geometrische Längen, α und β bezeichnen die Energie pro Länge für die Bildung eines Domänenrandes in 5-fach bzw. 2-fach Richtung einer (5×2) -rekonstruierten Domäne im Kontakt zu einer (7×7) -rekonstruierten Fläche. In b) hat die rote Domäne die senkrechte Domäne vollständig durchstoßen und ist nun $l' + b$ lang.

- Obwohl Domänen entlang der 2-fach Richtung in beide Richtungen wachsen, durchstoßen solche Domänen nicht zwangsläufig in beiden Richtungen andere Domänen.
- Einige Domänen wachsen viel schneller als andere. Die augenscheinliche Wachstumsgeschwindigkeit hat allerdings nichts mit der Fähigkeit zu tun, andere Domänen durchstoßen zu können.
- Die Anzahl der Durchstoßungen liegt in derselben Größenordnung wie die Anzahl der normalen Domänenberührungen.

6.5.2 Energetik des Randbereichs

Um die Energetik eines Durchstoßes zu berechnen, sollte es allgemein unerheblich sein, welche Orientierung eine (5×2) -Domäne auf einer glatten Oberfläche ohne Stufen hat. Deshalb beschränkt sich die folgende Rechnung auf die Energetik des Randbereichs der involvierten (5×2) -Domänen – die Gesamtfläche der (5×2) -rekonstruierten bleibt idealisierter Weise während des Vorgangs gleich und geht somit nicht in die Rechnung ein. In Abb. 6.10 ist schematisch das Modell einer Domänenberührung zweier (5×2) -Domänen

unterschiedlicher Orientierung gezeigt. In a) berühren sich die Domänen gerade, in b) hat die rote Domäne die weiße Domäne durchdrungen. b und l bezeichnen die Abmessungen der durchdrungenen Domäne, b' und l' die Abmessungen der durchdringenden Domäne. α ist die Energie pro Länge für den Randbereich entlang der 5-fach Richtung, β ist die Energie pro Länge für den Randbereich entlang der 2-fach Richtung – im Kontakt zu einer (7×7) -Domäne. Für die Berechnung ist es unerheblich, ob die Einheitszelle rechteckig bzw. geschert ist, da die Längen der Ränder gleich bleiben. Vor dem Durchstoßen ist die Oberflächenenergie, die sich aus dem Randbereich ergibt:

$$2 \cdot \alpha \cdot b + 2 \cdot \beta \cdot l - \beta \cdot b' + \alpha \cdot b' + 2 \cdot \beta \cdot l' + \gamma \cdot b'$$

Wobei γ die Wechselwirkung zwischen den Domänenrändern zweier (5×2) -Domänen bei einem 2-fach Richtung/5-fach Richtung Kontakt beschreibt. Diese Wechselwirkungsenergien α , β und γ müssen positiv sein – wenn sie negativ wären, würde die Anzahl der Grenzflächen durch eine Maximierung der Anzahl von (5×2) Domänen maximiert – im Endeffekt würde das zu fraktalen Rändern führen. Denkbar wäre allerdings, dass die Wechselwirkungsenergie von der Orientierung der (5×2) -Domänen zu den benachbarten (7×7) -Domänen – z.B. Kontakt zu Hälften mit Stapelfehler bzw. ohne Stapelfehler – abhängt. Da allerdings bei niedrigeren Temperaturen und geringen Diffusionslängen bzw. sehr glatten Oberflächen alle drei Richtungen der (5×2) -Rekonstruktion gut ausgeprägt sind, ist davon auszugehen, dass eine Abhängigkeit von der Ausrichtung vernachlässigbar ist.

Nach dem Durchstoßen ist die Randenergie:

$$2 \cdot \alpha \cdot b + 2 \cdot \beta \cdot (l - b') + 2 \cdot \alpha \cdot b' + 2 \cdot \beta \cdot l' + 2 \cdot \gamma \cdot b$$

Dass sich die durchstoßene Domäne im Zweifelsfall ebenso schnell vergrößert, wird in dieser Rechnung erst einmal vernachlässigt. Die Differenz der beiden Energien ist:

$$-\beta \cdot b' + \alpha \cdot b' + 2 \cdot \gamma \cdot b - \gamma \cdot b'$$

Die Längen der beiden Domänen sind also für die Energetik unerheblich, es zählt allein die Breite in 5-fach Richtung – b bzw. b' . Damit eine Domänen-durchstoßung stattfinden kann, muss diese Energiedifferenz kleiner 0 sein:

$$(-\beta + \alpha - \gamma) \cdot b' + 2 \cdot \gamma \cdot b \leq 0$$

Nach Umformung:

$$\frac{b'}{b} \geq \frac{2 \cdot \gamma}{\beta + \gamma - \alpha}$$

Das Endergebnis eines Durchstoßes ist also umso energetisch günstiger, je breiter die durchdringende Domäne ist. Weiterhin muss als Bedingung erfüllt sein, dass der Nenner $\beta + \gamma - \alpha$ größer 0 ist. Diese Rechnung ist in Übereinstimmung mit den oben genannten Beobachtungen. Insbesondere wäre es eine Erklärung dafür, weshalb Domänen an Stufenrändern nicht durchdrungen werden. Diese sind aufgrund der bevorzugten Bildung an Stufenkanten wesentlich breiter als andere Domänen auf der Oberfläche. Außerdem wäre es für diesen Fall denkbar, dass sich die Randenergie für einen Kontakt der 2-fach Richtung mit einer Stufe von der eines Kontakts 5-fach Richtung mit Stufe erheblich unterscheidet. Sollte dies der Fall sein, so müsste innerhalb der obigen Rechnung idealerweise ein Kontakt entlang der 5-fach Richtung energetisch ungünstiger als für die 2-fach Richtung sein. Dafür spricht ebenso die bevorzugte Bildung der (5×2) -rekonstruierten Domänen entlang der Stufen.

Nach dieser idealisierten Rechnung ist es möglich, dass Domänen durchdrungen werden. Sie berücksichtigt allerdings nicht, dass es auch energetisch günstig sein muss, nur teilweise in eine Domäne einzudringen. Die Randenergetik im Fall eines teilweisen Eindringens um Δl ist:

$$2 \cdot \alpha \cdot b + \beta \cdot l + \beta \cdot (l - b') + \alpha \cdot b' + 2 \cdot \beta \cdot l' + 2\gamma \cdot \Delta l + \gamma \cdot b'$$

Die Energiedifferenz ist $2 \cdot \gamma \cdot \Delta l$, also immer positiv. Aus der Energetik des Randbereichs folgt also, dass das Endergebnis energetisch günstig sein kann, aber wegen des notwendigen Zwischenschritts nicht realisiert wird.

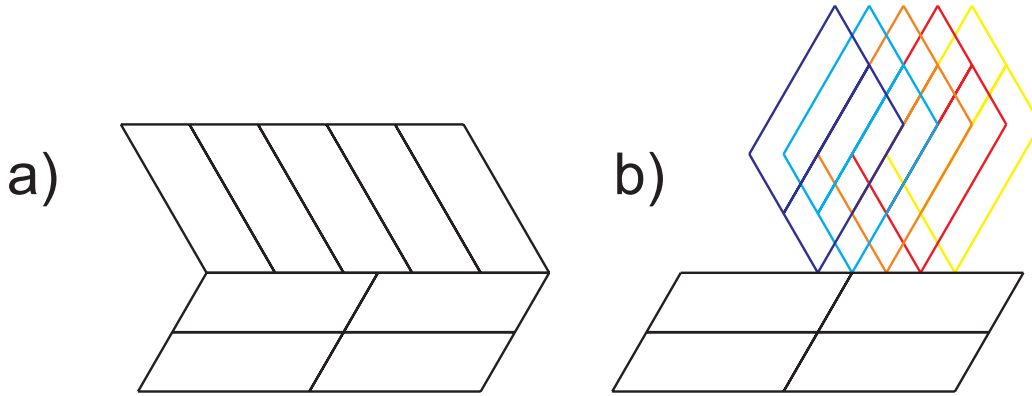


Abbildung 6.11: Dargestellt ist der Kontakt einer Domäne (unten) mit den Domänen der beiden anderen Rotationsrichtungen a) und b). Die theoretisch möglichen Spiegeldomänen sind nicht eingetragen, da nur eine Spiegeldomäne für jede Rotationsrichtung existiert. In a) gibt es nur einen möglichen Kontakt, da sich alle möglichen Versätze gegenüber der 5-fach Richtung der unteren Domäne einstellen. In b) gibt es ebenso nur qualitativ gleichwertige Berührungssituationen, da sich entlang des Rands alle möglichen Versätze entlang der 5-fach Richtung der unteren Domänen ausbilden.

6.5.3 Translationsversatz im Berührungspunkt

Ein weitergehender Ansatz ist, dass die Energetik des Kontaktbereichs beider Domänen von dem Versatz der Domänen zueinander abhängt. Es gibt qualitativ zwei unterschiedliche Varianten, in der eine Domäne eine andere Domäne berührt. Die durchdringende Domäne hat zwei mögliche Abstände in 2-fach Richtung zur durchdrungenen Domäne – 0 und 1 Gitterkonstante im Kontaktpunkt bevor die Domäne umgewandelt wird. Im Kontaktbereich präsentiert die durchdrungene Domäne ihre 2-fach Richtung, so dass im Zusammenspiel mit der ungeradzähligen Länge der 5-fach Richtung der durchdringenden Domäne alle möglichen Varianten für den Kontakt zweier Zellen der (5×2) -Rekonstruktion durchgespielt werden – Abb. 6.11. Mit diesem Ansatz kann erklärt werden, weshalb sich die Wechselwirkungsenergie γ für verschiedene Domänenkontakte unterscheiden kann. Auch wird es dadurch möglich, unterschiedlich breite Zwischenbereiche – weder (5×2) - noch (7×7) - rekonstruiert – einzuführen. Es ändert aber nichts daran, dass jedes Eindringen den Kontaktbereich und damit die Oberflächenenergie ver-

größert.

Da es für (5×2) -rekonstruierte Domänen energetisch günstig ist, den Rand zu (7×7) -rekonstruierten Bereichen entlang intakter (7×7) -Zellen zu haben[32][76][77], ist das Wachstum in Bündeln von sieben Reihen – entsprechend fünf ganzer (7×7) -Zellen – bevorzugt[32]. Auch dies kann dazu führen, dass einzelne Domänenränder eine andere Energetik besitzen. Im Kontaktbereich zwischen zwei (5×2) -Domänen werden (7×7) -rekonstruierte Bereiche gänzlich aufgelöst und das Problem bleibt bestehen, dass ein folgendes Eindringen energetisch ungünstig ist.

Das Ergebnis aus Abschnitt 6.4 ist, dass sich eine Domäne auf Kosten der beiden anderen Domänen bei einer bestimmten Temperatur entwickelt – ohne weiteren Nachschub von Goldatomen. Dies spricht für die Domänenverdrängung als einen thermisch aktivierten Prozess. Als wichtiger Effekt wäre ein thermisch aktivierter Materialtransport zwischen den Domänen denkbar, da sich die Konzentration an Gold (siehe Abschnitt 5.2.9) und Silizium (siehe Adatomkonzentration Abschnitt 5.2.11) in den (5×2) -rekonstruierten Bereichen in einem weiten Bereich einstellen lässt.

6.6 Auswahl einer (5×2) -Domänenrichtung

Es fällt bei vielen Präparationen bei hohen Temperaturen auf, dass eine Domänenrichtung dominanter als die beiden anderen ausfällt, was mit der Ausrichtung der Stufen auf dieser Oberfläche in Verbindung gebracht werden kann. Dies ist von verschiedenen Arbeitsgruppen berichtet worden und ist insbesondere für Charakterisierung mit Photoemissionsspektroskopie wichtig [42],[58],[14],[38]. Durch geeignete Wahl des Substrats kann die Auswahl der möglichen Domänenrichtungen auf einer Oberfläche auf eine Richtung – die Domänenrichtung parallel zu Stufen – reduziert werden¹. Wie von Himpel et al.[39][57] erwähnt, reicht dazu bereits eine Fehlneigung von 1° des Substrats mit einem mittleren Stufenabstand von 180 \AA aus.

Der Einfluss von Stufen soll anhand der folgenden Beugungsbilder illus-

¹Auch "Single-Domain-Growth" genannt

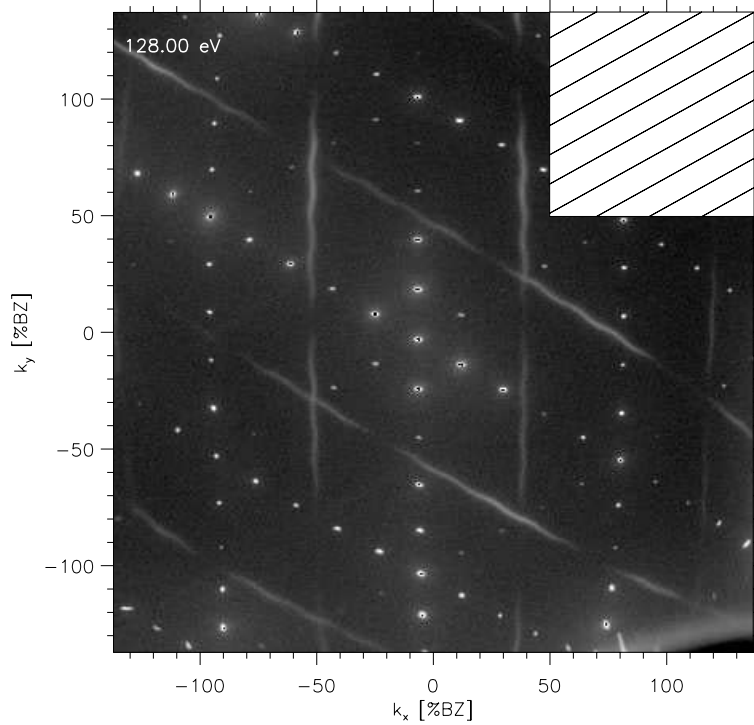


Abbildung 6.12: Beugungsbild einer nominal wohlorientierten d.h. $< 0,2^\circ$ fehl-geneigten Oberfläche – Präparation bei 437°C , gefolgt von einem 10 s langen tempern bei 840°C . Die zugehörige Stufenausrichtung ist schematisch rechts oben eingetragen (aus [93]).

triert werden: In Abb. 6.12 liegt die Stufenausrichtung so, dass die Stufen nicht parallel zu einer 2-fach Richtung einer der drei Domänen liegen und vielmehr Kondensationspunkt von zwei unterschiedlichen Domänenrichtungen im Winkel von 120° sind. Ist die Oberfläche sehr stark fehlgeneigt, kann die Ausbildung einer Domänenrichtung sehr viel einfacher präpariert werden – siehe Abb. 6.13.

Die Erklärung von Tsukanov et al.[90] als Umordnung der Oberfläche durch einen reinen Diffusionseffekt kann nicht zutreffen, da auch mit sehr geringen Bedeckungen ohne einen Konzentrationsgradienten über die Probe diese Domänenordnung erreicht werden kann².

²In dem Experiment von Tsukanov et al. wurden 10 ML Au in der Mitte der Probe durch eine Maske aufgedampft und durch Tempern der Probe mit direktem Stromdurchgang bei 900°C verteilt, wobei nicht lange genug getempert worden ist, um eine einheitliche Phase auf der Oberfläche zu erzeugen. Weiterhin liegt die (5×2) -Domänenrichtung nicht parallel

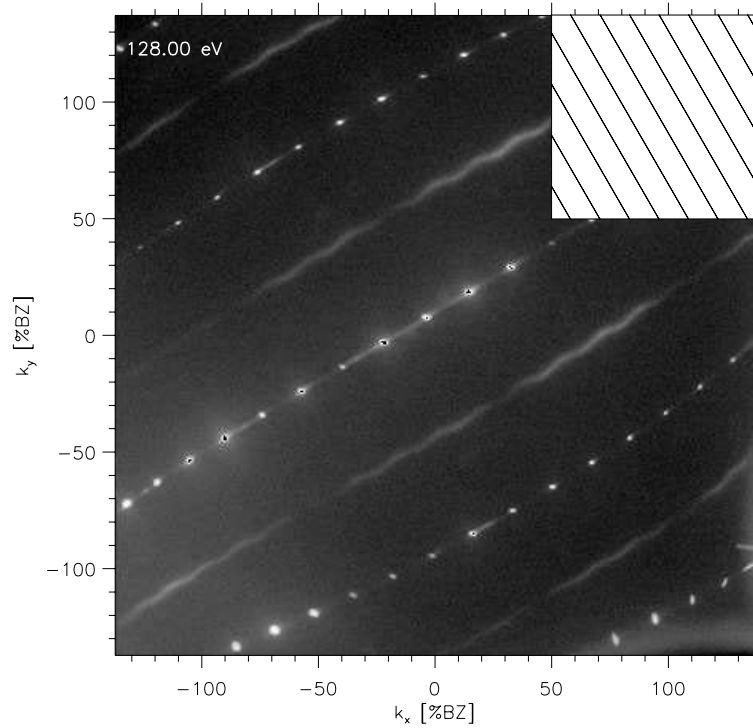


Abbildung 6.13: Beugungsbild einer 2° fehlgeneigten Siliziumprobe, präpariert bei 437°C , nach 10 s Tempern bei 860°C . Rechts oben ist schematisch die Stufenorientierung eingezeichnet (aus [93]).

Um eine "Single Domain" Oberfläche zu erzeugen, gibt es zwei Verfahren: Im ersten Verfahren wird mit einer niedrigen Rate – bei eigenen Messungen z.B. $0,04\text{ ML/min}$ – bei höheren Temperaturen – 600°C bis 700°C – Gold aufgedampft. Dies lässt die Goldatome bis zur nächsten Stufenkante diffundieren um die sich dort bildende (5×2) -rekonstruierte Fläche zu erweitern. Im zweiten Verfahren wird die Oberfläche mit Gold bis zu einer geschlossenen Lage von (5×2) -rekonstruierten Domänen bedeckt. Tempern der Probe bei einer Temperatur von über 800°C führt zu einem Phasenübergang zur (1×1) -Phase[25] und somit zu einem Gittergas von Goldatomen. Aus dieser Phase kann die (5×2) -Phase beim Abkühlen an den Stufenkanten[2] in der Vorzugsrichtung kondensieren. Nach noch unveröffentlichten LEEM Aufnahmen von Meyer zu Heringdorf kondensie-

zum Konzentrationsgradienten.

ren (5×2) -Domänen bei Unterschreiten der Phasenübergangstemperatur zur (1×1) -Phase schlagartig über Bereiche von vielen Mikrometern. Sollte es $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierte Bereiche auf dieser Oberfläche geben, so können diese gezielt wegen der höheren Desorptionsenergie der (5×2) -gegenüber $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion[100] bei hohen Temperaturen desorbiert werden. Dazu sollte angemerkt werden, dass bei konstanter Goldbedeckung im Übersättigungsbereich – (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase – die (5×2) -rekonstruierten Bereiche auf Kosten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierter Bereiche beim Abkühlen wachsen bzw. dass kleine – wenigstens beim Aufdampfen – (5×2) -rekonstruierte Bereiche schneller in $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierte Bereiche umgewandelt werden[83]. Dies sollte den zusätzlichen Effekt geben, dass kleine Domänen mit leichter Übersättigung an Gold Teil der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche werden, um beim Abkühlen Teil der bevorzugten (5×2) -Domänenrichtung zu werden. Weiterhin ist eine thermische Instabilität der (5×2) -Domänen in Abhängigkeit von der Größe vorstellbar, d.h. kleine Domänen wandeln sich schneller in Bereiche der (1×1) -Phase um. Dazu gibt es allerdings bisher keine – hierfür besonders gut geeignete – LEEM Messungen, die das Verhalten kleiner Domänen bei diesem Übergang untersucht haben.

Es ist nicht auszuschließen, dass Elektromigration die Ausrichtung der Domänen befördern kann. Aoki et al.[2] haben gefunden, dass Au und Si Atome in Richtung der Anode bewegt werden, also Elektromigration auf dieser Oberfläche stattfindet. Auch ändert Goldadsorption in Abhängigkeit von der Temperatur und Stromrichtung die Bündelung von Stufen[47]. Allerdings hat ein einfacher Test mit Umkehrung der Stromrichtung keine Änderung des Ergebnisses gebracht d.h. es gab nicht eine 1D-Ausrichtung der Oberfläche für eine Stromrichtung und eine symmetrische Verteilung der Domänenrichtungen für die gegensätzliche Richtung.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass wie aus der Literatur bekannt, eine leicht fehlgeneigte Fläche ausreicht, um eine Oberfläche mit (5×2) -Domänen nur einer Orientierung zu präparieren. Die Stufen müssen dabei so liegen, dass die 2-fach Richtung einer der drei Domänenrichtungen parallel zu den Stufen liegt. Bei der notwendigen Präparation muss die Temperatur hoch

genug sein, damit die Diffusionslänge der Goldatome groß genug ist, um die nächste Stufe zu erreichen. Alternativ kann eine gesättigte Oberfläche über die Grenztemperatur zur (1×1) -Phase geheizt und dann abgekühlt werden. Ein weiterer Effekt ist die Domänenverdrängung (siehe Abschnitt 6.5), die bisher nur für die goldinduzierte (5×2) -Rekonstruktion gefunden worden ist. Als weiterer Faktor wird eine geringere Stabilität kleinerer Domänen gegenüber Goldüberschuss bzw. hoher Temperatur vermutet. Damit der jeweilige Anteil dieser drei Effekte an der Bildung einer "Single-Domain" Oberfläche ermittelt werden kann, bieten sich weitergehende LEEM Experimente an.

Kapitel 7

Modelle der (5×2)-Rekonstruktion

7.1 Einführung

Erste Modelle der (5×2)-Rekonstruktion gingen wegen der Bedeckung von etwa 0,40 ML Au[5] von einfachen Annahmen wie alternierenden Anordnungen von Gold bzw. Siliziumreihen aus[5][55][30]. Diese Modelle sind zwar energetisch plausibel, können aber die Oberflächenenergiebänder, z.B. bestimmt aus Spektroskopiemessungen mit ARPES, und STM-Merkmale nicht erklären, wie von Kang und Lee[43] in einer DFT-Rechnung für die Modelle von Marks bzw. Hasegawa gezeigt. Zuletzt veröffentlicht worden sind die Modelle von Erwin[18] und Riikonen et al.[65].

Das DHCC-Modell von Erwin produziert eine sinnvolle Energetik der Adatome, d.h. ein energetisches Minimum für eine Dichte von Adatomen im Rahmen der experimentell gefundenen. Die (5×2)-Rekonstruktion reproduziert die wesentlichen Merkmale des STM-Bildes inklusive der erwähnten Y-förmigen Merkmale (siehe Abb. 5.10, Seite 60). Die Position der Adatome ist allerdings falsch.

Das Modell von Riikonen et al. hat eine bessere Energetik als das Modell der (5×2) von Erwin. Mit dem Hinzufügen von Adatomen wird die Energetik der Adatome jedoch schlechter und das simulierte STM-Bild hat mit

dem experimentell gemessenen wenig gemein.

Am Anfang des Kapitels werden die experimentellen Befunde zur (5×2) -Rekonstruktion präsentiert und bewertet. Danach wird als wesentlicher Baustein der Rekonstruktion das HCC-Modell vorgestellt und die Rolle der Phasenverschiebungen innerhalb des HCC-Modells diskutiert. Darauf aufbauend wird das DHCC-Modell[18] von Erwin erläutert. Im Rahmen einer Kooperation mit Erwin ist dieses Modell als Ausgangspunkt für über 50 verschiedene Varianten – u.a. auch mit unterschiedlichem Siliziumanteil – genommen worden. Das beste dabei gefundene Modell – nach einer internen Zählung Modell 47 genannt – wird weiter unten präsentiert. Am Ende wird eine Neuinterpretation der Rolle der Adatome der (5×2) -Rekonstruktion vorgestellt.

7.2 Experimentelle Befunde zur (5×2) -Rekonstruktion

Experimentelle Befunde zum Anteil von Gold und Silizium:

- Der Siliziumanteil in der (5×2) muss etwa 1,1 - 1,3 ML betragen[87]. Dies ist konsistent mit eigenen Ergebnissen in Abschnitt 6.2. Der Siliziumanteil in Form von Siliziumadatomen ist dabei mit etwa 1/40 ML[46] (1/32 ML nach Baski et al.[4]) eher zu vernachlässigen.
- Der Goldanteil in der Rekonstruktion beträgt mindestens 0,4 ML Gold (0,443 ML nach Bauer[5]).

Experimentelle Befunde zu Adatomen:

- Die Adatome müssen Siliziumatome sein[46].
- Die Adatome müssen innerhalb der Einheitszelle eine feste Position besitzen (s.a. Abschnitt 5.2.8) – entlang der 2-fach Richtung mittig zentriert zwischen den Merkmalen der 2-fach Richtung und etwa 1,7 Gitterkonstanten in Richtung senkrecht zur 2-fach Richtung zu diesen Merkmalen versetzt. Weiterhin bedeutet ein fester Adsorptionsplatz, dass

mögliche benachbarte Adsorptionsplätze in der (5×2) -Einheitszelle nicht energetisch gleichwertig sein dürfen.

- Die Adatome müssen eine repulsive Wechselwirkung entlang der 2-fach Richtung besitzen, die zu einem Mindestabstand von 4 Gitterkonstanten führt (siehe Abschnitt 5.2.8, Seite 71).
- Das Hinzufügen von Siliziumadatomen muss energetisch günstig mit einem Energieminimum bei der experimentell gefundenen Konzentration sein (siehe auch Experimente von Kirakosian et al.[46]). Es muss allerdings angemerkt werden, dass die Bandbreite der Siliziumkonzentration recht groß ist (siehe Abschnitt 5.2.11).
- Die Abschnitte mit Adatomen in Ketten (siehe Abschnitt 5.2.11, Seite 82) müssen halbleitend, die übrigen Abschnitte metallisch sein[99].
- Die Höhe der Adatome im STM ist etwa $1,3 \text{ \AA}$ [6].
- Adatome in direkt benachbarten (5×2) -Zellen, d.h. im Abstand von nur 2 Gitterkonstanten, erscheinen niedriger[31].
- Merkmale, die Adatomen benachbart sind, erscheinen elektronisch erhöht (siehe Abb. 5.10, Seite 60).

Positionen von Atomen:

- Die Goldatome sind in Reihen in $[\bar{1}10]$ -Richtung[51],[50],[41], also entlang der 2-fach Richtung der (5×2) -Rekonstruktion, angeordnet.
- Der bevorzugte Adsorptionsplatz für Goldatome ist eingebettet in der Rekonstruktion, zwei Siliziumatome der zweiten Lage in einer Höhe von $0,15 \text{ \AA}$ überbrückend – engl. "bridge position" (Messung mit stehenden Röntgenwellen [7])
- Au–Au Bindungen dominieren über Adsorbat-Substrat Interaktion (Hinweis aus Röntgenbeugungsmessungen[70]).

- Einige Siliziumpositionen sind teilweise durch Gold ersetzt (Röntgenbeugungsmessung[70]). Dies kann an einer Legierungsbildung, d.h. unterschiedlichen Gold- und Siliziumanteilen in (5×2) -rekonstruierten Bereichen, aber auch an dem Einbau einer Phasenverschiebung liegen (siehe Abb. 5.11, Seite 62).
- Die dunklen Streifen im STM-Bild liegen auf Gitterpositionen der ersten Lage[4]. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der Bildung einer Siliziumwabenkette (siehe HCC-Modell weiter unten).

Einbau von Fehlern:

- Benachbarte Reihen müssen auch bei Einführung einer Phasenverschiebung nahtlos aneinander passen. Jedenfalls ändert sich eine Reihe nicht, wenn in der benachbarten Reihe eine Phasenverschiebung eingebaut wird (siehe Abb. 5.11, Seite 62).
- Spiegeldomänen müssen eine Phasenverschiebung der Länge 1 Gitterkonstante einführen. (siehe Abschnitt 5.2.6)

Von den hier vorgestellten Beobachtungen sind die für den Silizium- bzw. den Goldanteil und die für die Rolle der Adatome am wichtigsten für die Weiterentwicklung des (5×2) -Modells.

7.3 Das HCC Modell

Das Honeycomb-Chain-Channel-Modell von Colloza-Davila et al.[13], energetisch bewertet von Erwin und Weitering[19], ist mittlerweile das akzeptierte Modell für von Alkalimetallen (Li[26], Na [26], K[26]) und von Ag[50] induzierten (3×1) - bzw. für von Erdalkalimetallen (Mg[48], Ca[22], Ba[52]) induzierten (3×2) -Rekonstruktionen auf der Si(111)-Oberfläche.

Diese Struktur bildet ein wesentliches Element in der goldinduzierten (5×2) -Rekonstruktion, weshalb sie an dieser Stelle kurz vorgestellt wird.

Das gemeinsame Element aller dieser Rekonstruktionen ist dabei die Bildung von Ketten – engl. "chain" – aus Waben – engl. "honeycomb" – von Siliziumatomen. Der Zwischenbereich zwischen den Siliziumwabenketten, der

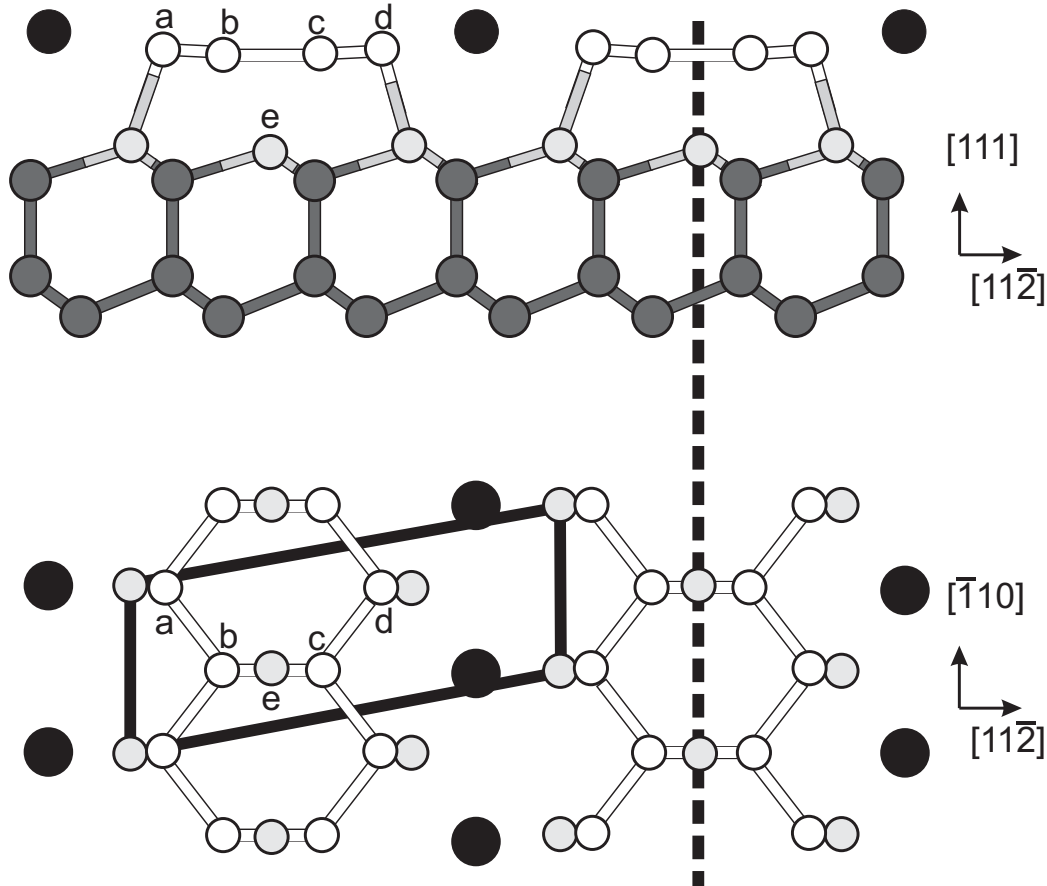


Abbildung 7.1: Honeycomb-Chain-Channel Modell (HCC-Modell) für die Lithium induzierte (3×1) -Rekonstruktion. Die weißen Atome bilden eine Siliziumwabenkette mit graphitischen Bindungen. Die schwarzen Adsorbatatome befinden sich im Kanal zwischen den Wabenketten im Abstand von jeweils einer Gitterkonstante. Der Abstand der Adsorbatatome verdoppelt sich aus elektronischen Gründen für Erdalkalimetallinduzierte (3×2) -Rekonstruktionen. Die Unterlage ist hellgrau dargestellt, das Substrat dunkelgrau. Eine Einheitszelle der (3×1) ist mit einem Kästchen im unteren Bild markiert. (Darstellung nach Erwin et al.[19])

Kanal – engl. ”channel”, wird von Adsorbatatomen bevölkert. Ein experimenteller Hinweis für diese Struktur in den (3×1) - bzw. (3×2) -rekonstruierten Bereichen ist die Siliziumbedeckung von $4/3$ ML in der obersten Lage (z.B. Mg[48], Ag[67]).

Es scheint energetisch sehr günstig zu sein, dass die resultierende Rekonstruktion isolierend ist d.h. gefüllte Oberflächenzustandsbänder besitzt. Das bedeutet, dass eine gerade Anzahl von Elektronen in der Einheitszelle benötigt wird.

Bei den Alkalimetallen bedeutet das, dass zu den fünf ungebundenen Elektronen des Siliziumsubstrats ein Elektron des Adsorbatatoms kommt. Dies führt dazu, dass sich in der $[1\bar{1}0]$ -Richtung die Adsorbatatome in einem Abstand von einer Gitterkonstante befinden, was zu einer Bedeckung von $\frac{1}{3}$ ML führt.

Bei den Erdalkalimetallen führt das wegen der Doppelwertigkeit – zwei freie Elektronen des Adsorbatatoms – zu einer Besetzung der Hälfte aller Adsorbatplätze im (3×1) Fall und somit einer Bedeckung von $\frac{1}{6}$ ML[22]. Diese Verteilung ist nicht streng regelmäßig, so dass im Fall der (3×2) -rekonstruierten Flächen, wie z.B. bei der Ba[69] induzierten, Versetzungen um eine Gitterkonstante eingebaut sind, die zu deutlichen Streifen im Beugungsbild führen (auch Ca[52]).

7.3.1 Rolle der Phasenverschiebungen

Da Phasenverschiebungen für die (5×2) -Rekonstruktion ebenso wie für die Erdalkalimetallinduzierten (3×2) -Rekonstruktionen existieren[69], ist anzunehmen, dass eine Modifikation der Siliziumwaberkette vorliegt, die im HCC-Modell das verbindende Element darstellt. Für diese Modifikation spricht der experimentelle Befund, dass die Merkmale in 2-fach Richtung – nach dem DHCC-Modell von Erwin (siehe Abschnitt 7.4) ein Merkmal der Siliziumwaberkette – im Bereich der Phasenverschiebung verschwinden.

Innerhalb dieser Siliziumwaberkette findet – aufgrund der sp^2 Hybridisierung anstelle der üblichen tetraedischen sp^3 Hybridisierung – ein Wechsel vom tetraedischen Bindungswinkel $109,5^\circ$ zu 120° statt. Da die Waben trotz

der geänderten Bindungswinkel immer noch im Abstand von einer Gitterkonstante einrasten, sollte dieser vergrößerte Bindungswinkel zu einer Druckspannung der Kette in 2-fach Richtung führen, da sich dafür notwendigerweise die Bindungslängen um bis zu 6% reduzieren. Sollte diese Annahme richtig sein, bieten sich Phasenverschiebungen in 2-fach Richtung als geeigneter Mechanismus an, um diese Druckspannung abzubauen.

Eine Überprüfung dieser Hypothese dürfte sowohl theoretisch als auch experimentell schwierig sein. Für Computersimulationen muss die simulierte Oberfläche viel größer als übliche Flächen zur Simulation einer Rekonstruktion sein – insbesondere da die (5×2) -Einheitszelle größer als viele andere ist. Auch wenn experimentell eine dynamische Stressmessung möglich wäre, wird es schwierig, wenn nicht gar unmöglich sein, den intrinsischen Stress der (5×2) -rekonstruierten Bereiche von einer Stressrelaxation durch Phasenverschiebungen zu trennen. Sinnvoller erscheint daher, bei niedrigen Temperaturen kleine (5×2) -Domänen zu erzeugen und auf Phasenverschiebungen zu untersuchen. Die Größe der (5×2) -Domänen kann über die Goldbedeckung eingestellt werden, da die Bedeckung der Oberfläche mit steigender Goldbedeckung linear zunimmt. Die Erwartung wäre, dass die Dichte der Phasenverschiebungen für Domänen unter einer kritischen Größe sinkt.

7.4 DHCC-Modell der (5×2) -Rekonstruktion nach Erwin

Dieses Modell wurde von Erwin 2003[18] publiziert und mit Dichtefunktionalrechnungen – engl. "DFT"/"first-principles total-energy-calculations" – simuliert. Die oberste Doppellage des Siliziumsubstrats wird bei Bildung der (5×2) -Rekonstruktion abgetragen. Darauf aufbauend bildet sich eine double honeycomb chain (DHCC) Rekonstruktion¹ mit einer Siliziumwabenkette bzw. einer Kette aus Waben zur Hälfte aus Gold und Siliziumatomen. Der Goldanteil in diesem Modell beträgt 0,4 ML, der Siliziumanteil 1,4 ML. Der Begriff "Double" ist hier leicht verwirrend benutzt, da die Au/Si Kette im-

¹engl. für doppelte Bienenwabenketten

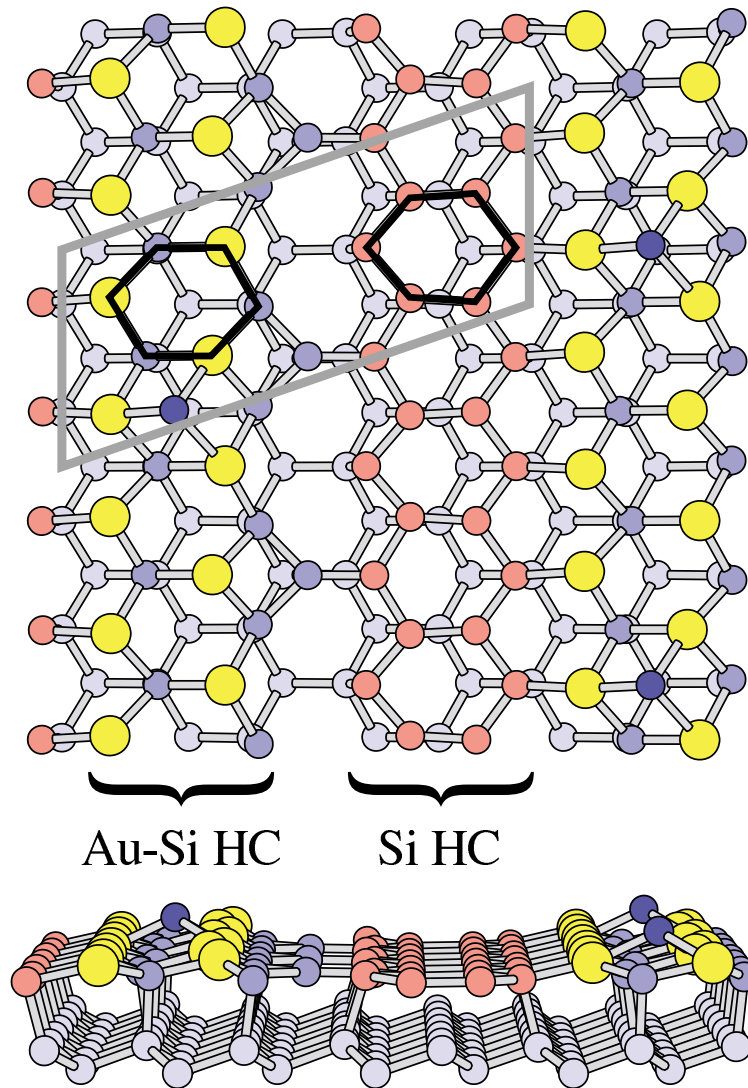


Abbildung 7.2: DHCC-Modell der (5×2) -Rekonstruktion von Erwin (Abb. aus [18]). Die oberste Doppellage wird entfernt und durch zwei Wabenketten ("Honeycomb-chains") – Au/Si (gelb/blau) links und nur Si (rot) mit graphitischen Bindungen rechts – ersetzt, die beide durch eine zusätzliche Reihe von Si Atomen im Abstand 2 Gitterkonstanten ("rebonding row") verbunden sind. Dunkelblau eingezeichnet sind drei Si Adatome, die in der schrägen Aufsicht besser sichtbar sind. Eine Einheitszelle der (5×2) -Rekonstruktion ist eingezeichnet. Die Merkmale der 2-fach Richtung entstehen durch die Siliziumatome am linken Rand der reinen Siliziumwaben, die nicht mit einem Siliziumatom der "rebonding row" verbunden sind.

mer noch tetraedische Bindungen besitzt. Die reine Siliziumwabenkette ist dagegen wie bei dem verwandten Modell der (3×1) -Rekonstruktionen – das HCC (Honeycomb Chain-Channel) Modell von Erwin und Weiering[19] – mit graphitischen π -Bindungen aufgebaut.

Da der Abstand zwischen beiden Ketten zu groß ist, um diese direkt zu miteinander zu binden, wird zwischen Au/Si-Wabenkette links und Si-Wabenkette rechts eine zusätzliche Reihe Si-Atome eingeführt. Dies ergibt zwei mögliche Konfigurationen - eine " (5×1) " mit einer Überkoordinierung der Siliziumatome in der Au/Si Kette und eine " (5×2) " Konfiguration, wobei jedes zweite Atom der zusätzlichen Kette entfernt und damit die Überkoordinierung aufgehoben worden ist. Beide Varianten sind energetisch fast gleichwertig und deutlich günstiger als die energetisch fast gleichwertigen Vorgängermodelle von Marks et al.[55] bzw. Hasegawa et al.[30] (etwa 2,6 eV pro (5×2) -Zelle).

Der energetische Unterschied zwischen der " (5×1) " und der " (5×2) " Konfiguration wird durch das Hinzufügen von Siliziumadatomen bewirkt, die die metallische Rekonstruktion der reinen (5×2) -Rekonstruktion ohne Adatome in eine energetisch günstigere, weniger metallische Anordnung umwandeln.

Während die " (5×1) " ohne Adatome um weniger als $1 \text{ meV}/\text{\AA}^2$ günstiger als die " (5×2) " Konfiguration ist, ändert sich das Bild mit zunehmender Dotierung. Für steigende Dotierung wird die " (5×1) " immer ungünstiger, während die " (5×2) " ein Minimum bei 0,5-0,6 zusätzlichen Elektronen pro (5×2) -Zelle besitzt und damit etwa 0,25 meV günstiger als die " (5×1) " Konfiguration ist. Sitzen die Adatome in ihrem häufigen Abstand von 4 Gitterkonstanten in 2-fach Richtung, so können die Adatome ein "halbes" Elektron pro (5×2) -Zelle abgeben und die Unterlage mit diesem idealen Wert dotieren. Eine ideale Bedeckung an Adatomen für die gesamte (5×2) -rekonstruierte Oberfläche wäre damit $1/20 \text{ ML} = 0,025 \text{ ML}$, während experimentell eine Bedeckung im Mittel von 0,032 ML - 0,036 ML gefunden wird (siehe Abschnitt 5.2.8).

Unter anderem folgende Eigenschaften können mit diesem Modell korrekt beschrieben werden.

- Die Höhe der Adatome im simulierten STM-Bild ist etwa $1,5 \text{ \AA}$ (experimentell $1,3 \text{ \AA}$ [6])
- Die Adatome sind Siliziumatome [46]. Goldadatome heben sich im simulierten STM-Bild deutlich schlechter von der (5×2) -rekonstruierten Unterlage ab.
- Die Y-förmigen Merkmale [55][60] werden reproduziert (siehe auch Abb. 5.10, Seite 60).
- Merkmale der elektronischen Bandstruktur wie ein Wechsel von 1D-Charakteristik im oberen Energiebereich zu 2D-Charakteristik im Minimum und das Dispersionsverhalten ([1],[54]) werden reproduziert.
- Benachbarte Reihen der (5×2) -Rekonstruktion können mit beliebigem ganzzahligen Versatz von Gitterkonstanten in 2-fach Richtung angelegt werden. Das heißt, dass benachbarte Reihen von einer Phasenverschiebung strukturell nicht beeinträchtigt werden.
- Die Siliziumwaberkette produziert einen schwarzen Streifen über Positionen der ersten Lage des Si-Substrats, wie von Baski et al. [4] beobachtet.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das DHCC-Modell von Erwin viele experimentelle Merkmale reproduzieren kann, aber an der Position der Adatome scheitert, die nicht mittig zwischen den Merkmalen der 2-fach Richtung liegen, sondern dazu seitlich versetzt (siehe zum Vergleich Abb. 5.10, Seite 60).

7.5 Ein neues Modell für die (5×2) -Rekonstruktion

In einer Kooperation mit Steven C. Erwin (siehe auch früheres Modell in Abschnitt 7.4) wurden weitere Modelle der (5×2) -Rekonstruktion entwickelt und von Erwin mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie (DFT) bewertet – für

Details siehe [18]. STM-Bilder zum Vergleich mit dem Experiment wurden mit der Theorie von Tersoff und Hamann[89] simuliert. Da Tersoff und Hamann von einem kugelförmigen s-Orbital der Tunnelspitze ausgehen, können sich die simulierten STM-Bilder von experimentellen Daten unterscheiden, da über Orbitale andere Art, z.B. deutlich gerichtete d-Orbitale getunnelt werden kann. STM-Bilder können für den Vergleich mit dem Experiment für verschiedene Spannungen und insbesondere für besetzte/unbesetzte Zustände der Probe simuliert werden. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die Dotierung der Substrate im Experiment zu einer Änderung der Spannung im Vergleich zur Simulation führt, die von einer Fermienergie in der Mitte der Bandlücke ausgeht. Es muss angemerkt werden, dass für die besten simulierten STM-Bilder der Spannungsunterschied größer war, als von der Bandlücke des Siliziumhalbleiters zu erwarten gewesen wäre. Weiterhin entstehen alle Modellrechnungen ohne Berücksichtigung der Temperatur, d.h. bei 0 Kelvin.

Die Ausgangsbasis für die Modelle ist wie gehabt eine reine Siliziumwabenkette wie im HCC-Modell (siehe Abschnitt 7.3). Die Merkmale der 2-fach Richtung sind im DHCC-Modell (Abschnitt 7.4) sehr gut reproduziert, so dass anzunehmen ist, dass sich diese Merkmale im Modell durch Eckatome der Siliziumwaben herausbilden, die nicht mit einem Atom einer Verbindungsreihe ("rebonding row") verbunden sind.

Da die Energetik der Adatome in diesem Modell überzeugt – günstige Konzentration von Adatomen, Reduzierung der Metallizität der (5×2) durch Adatome – sind Modelle zu bevorzugen, in denen drei Goldatome in der obersten Lage der Rekonstruktion einen Adsorptionsplatz für Adatome bilden, der mittig zwischen zwei Merkmalen der 2-fach Richtung liegt. Weitere Ergebnisse für die Vielzahl von Modellen – es wurden insgesamt über 70 Modelle bzw. 120 "phase-boundary"-Modelle (s.u.) simuliert – zeigen unter anderem, dass es energetisch günstig ist, Siliziumatome mit der vollen Koordinierung von vier Bindungen in der Rekonstruktion, sowie Goldatome in der obersten Lage zu haben. Außerdem hat es sich bei vielen Modellen als energetisch günstig erwiesen, Goldatome auf Positionen entlang der Siliziumwabenkette zu setzen. Dies entspricht am ehesten der Konstellation in dem HCC-Modell (siehe Abschnitt 7.3), wo jede Siliziumwabenkette auf beiden

Seiten Adsorbatketten besitzt.

Ein generelles Problem für die Simulation der (5×2) -Rekonstruktion ist die Verteilung von Adatomen auf dieser Oberfläche. Damit verbunden ist eine Aufteilung in halbleitende Bereiche mit Adatomen und metallische Bereiche ohne Adatome[99], die viel größer sind, als die typischerweise für die Simulation verwendeten Bereiche von der Größenordnung von zehn Zellen.

7.5.1 Neues Modell – Modell 47

Das Modell 47 ist von den bisherigen Modellen das Modell, das am besten zu den experimentellen STM-Bildern, wie in Abb. 7.4 dargestellt, passt. Es kann gut die Merkmale im STM-Bild reproduzieren, wobei die Spannung des simulierten STM-Bildes eine deutliche Diskrepanz zur gemessenen Spannung aufweist, worauf oben schon eingegangen worden ist. Die Goldbedeckung des Modells ist 0,40 ML. Die Siliziumbedeckung liegt mit 1,4 ML höher als experimentell gefunden (siehe Abschnitt 6.2, Seite 134). Die Merkmale der 2-fach Richtung liegen ebenso wie im DHCC-Modell (Abschnitt 7.4) an der Position von Randatomen der Siliziumwabenkette. Die Y-förmigen Merkmale, in die die Merkmale der 2-fach Richtung auslaufen, werden im Wesentlichen von Goldatomen geprägt. Ein Vorteil dieses Modells ist, dass die Einheitszellen in 2-fach Richtung aus sich abwechselnden Reihen mit mehr bzw. weniger Gold bestehen, ähnlich wie von Yoon et al.[98] für die Ausbildung der Y-förmigen Merkmale beobachtet. Das Modell ist mit $-5,25 \text{ eV}/(5 \times 2)$ -Zelle energetisch günstiger als das DHCC- $(-4,68 \text{ eV}/(5 \times 2)$ -Zelle) und das Riikonen-Modell $(-4,8 \text{ eV}/(5 \times 2)$ -Zelle), aber energetisch ungünstiger als andere simulierte Modelle für diese Oberfläche $(-5,40 \text{ eV}/(5 \times 2)$ -Zelle). Wenn das Modell 47 tatsächlich das richtige Modell sein sollte, kann die energetische Differenz nur aus den Adatomen kommen. Werden die Adatome allerdings auf die experimentell gefundenen Plätze – über darunter liegenden Siliziumatomen und zwischen zwei Goldatomen und einem Siliziumatom – gesetzt, so wird diese Rekonstruktion energetisch ungünstig.

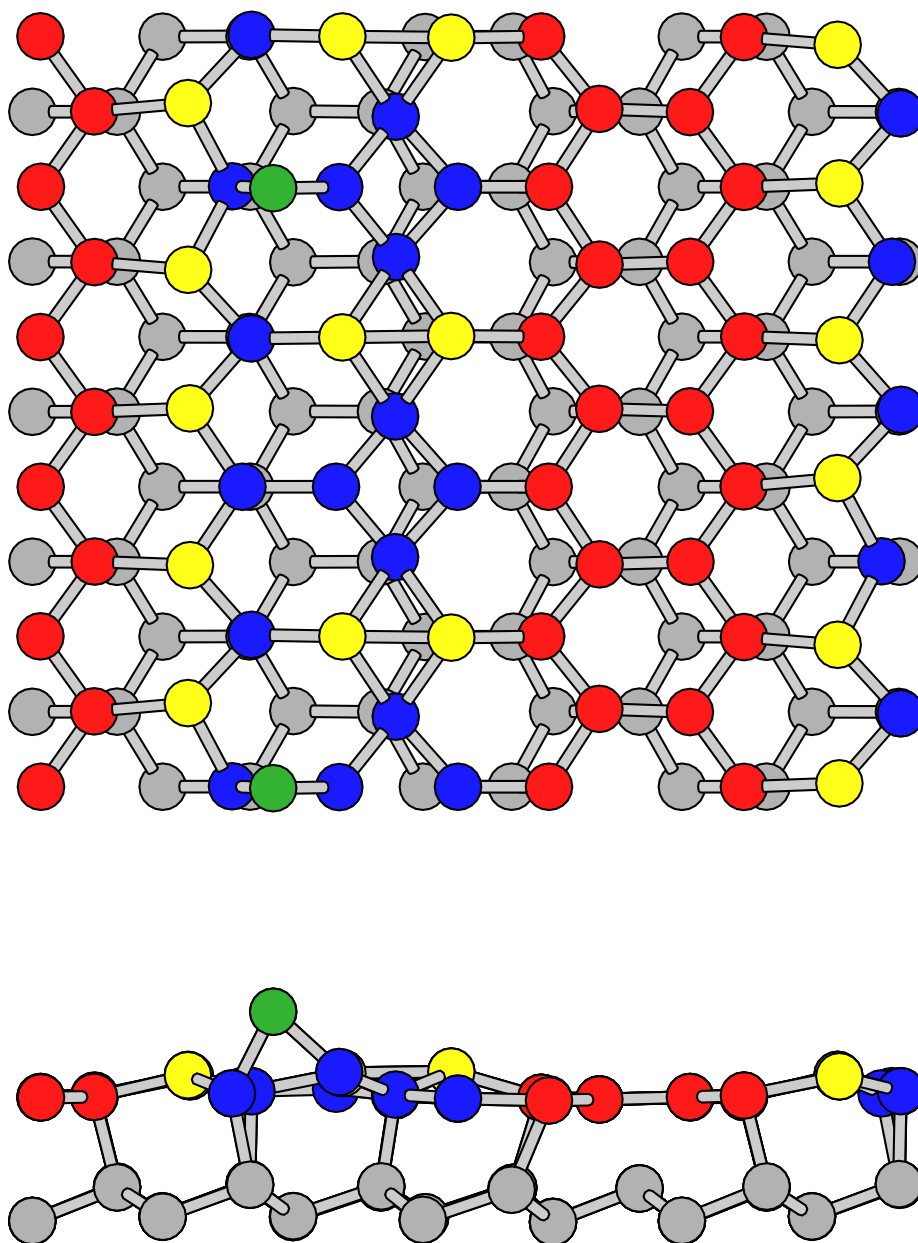


Abbildung 7.3: Modell 47 in der Draufsicht (oben) und seitlichen Ansicht (unten) Die Atome der Siliziumwabenkette (siehe HCC-Modell Abschnitt 7.3) sind rot eingezeichnet, sonstige Siliziumatome blau, bzw. Adatome grün eingezeichnet. Die Atome der darunter liegenden Doppellage des Substrats sind grau dargestellt. Goldatome sind gelb markiert. Der Adsorptionsplatz für das Siliziumadatom ist über einem darunter liegenden Siliziumatom zwischen zwei Goldatomen und einem Siliziumatom. (Bild von Erwin)

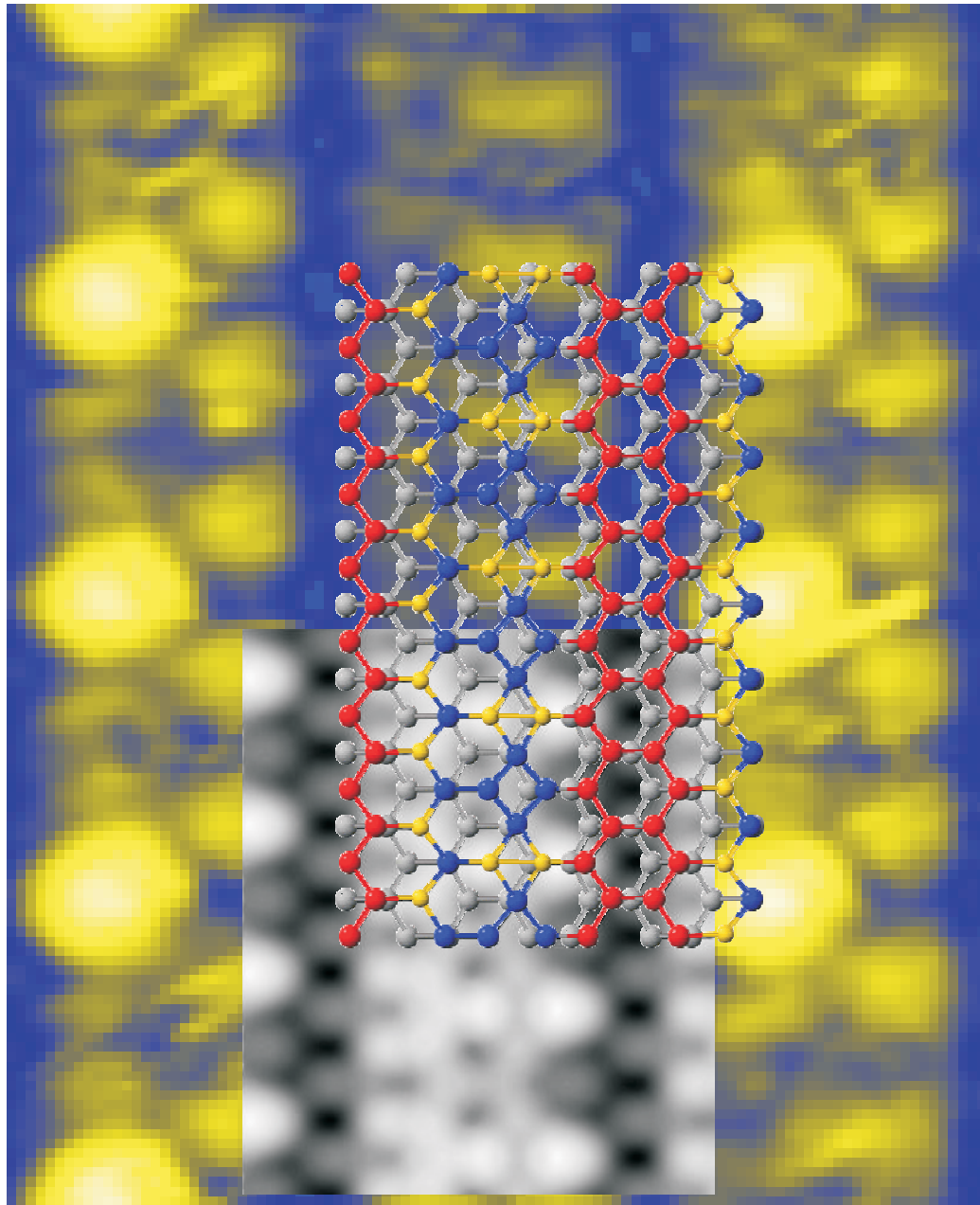


Abbildung 7.4: Über das experimentelle STM-Bild (-0,9 V) ist das Modell 47 bzw. dessen simuliertes STM-Bild (-2 V) gelegt (Bild von Erwin). Die Y-förmigen Merkmale innerhalb der Einheitszelle stimmen mit Positionen von Goldatomen überein. Die Merkmale in 2-fach Richtung liegen über Randatomen der rot eingezeichneten Siliziumwaberkette. Sonstige Siliziumatome sind blau, bzw. darunter liegende Siliziumatome grau eingezeichnet. Goldatome sind im Bild gelb markiert.

7.5.2 Phasengrenzenmodelle

Das Modell 47 ist wie das Modell von Riikonen et al.[65] eine Vertreterin einer Reihe von energetisch günstigen Modellen für die (5×2) -Rekonstruktion. Dabei werden die Siliziumwabenketten in den Zwischenbereich hinein mit Waben aus einer Mischung von Gold und Siliziumatomen erweitert (siehe Abb. 7.5). Diese Anordnung in Waben reduziert die Anzahl freier Bindungen effektiv. Es gibt allerdings eine Grenze – engl. "phase-boundary" genannt – die die Waben von benachbarten Siliziumwabenketten voneinander trennen, da diese nicht ohne eine Verschiebung – entsprechend einer Bindungslänge von Atomen auf der Si(111)-Oberfläche – ineinander übergehen können. Die Phasenverschiebung an solchen Grenzen ist allerdings nicht mit den Phasenverschiebungen innerhalb der Reihen zu verwechseln, die eine Phasenverschiebung um eine Gitterkonstante in 2-fach Richtung bewirken. Diese Familie an Modellen – 120 Stück – kann kombinatorisch durchfahren werden. Dabei wurde aus der Erfahrung der Energetik verschiedener Modelle eine Seite der Siliziumwabenketten mit Goldatomen verbunden. Die gegenüberliegende Seite wird nur zur Hälfte mit Goldatomen verbunden, um eine 2-fach Periodizität zu erlauben. Die verbleibenden Positionen der Doppellage aus Silizium- und Goldatomen kann nun in allen möglichen Kombinationen aufgefüllt werden, wobei eine Gesamtgoldbedeckung von 0,40 ML erreicht wird. Dabei sind Modelle zu eliminieren, die nicht spiegelsymmetrisch bzgl. einer Spiegelung senkrecht zu einer Hauptrichtung – die Längsrichtung entlang der Siliziumwabenkette – auf der Oberfläche ist. Die Position der Phasengrenze verschiebt sich dabei je nach Aufteilung der Gold- und Siliziumatome.

Innerhalb dieser Reihe konnte kein Modell gefunden werden, dass den experimentellen STM-Bildern entspricht und dabei energetisch günstiger war.

7.5.3 Neuinterpretation der Adatomrolle

Bisher ist bei allen Modellen davon ausgegangen worden, dass die Adatome die Unterlage nur insofern verändern, als dass die darin enthaltenen Atome nur anders relaxieren und sich mit dem Adatom verbinden. Ein neuer Ansatz kann dabei nur sein, dass sich die Zusammensetzung der Unterla-

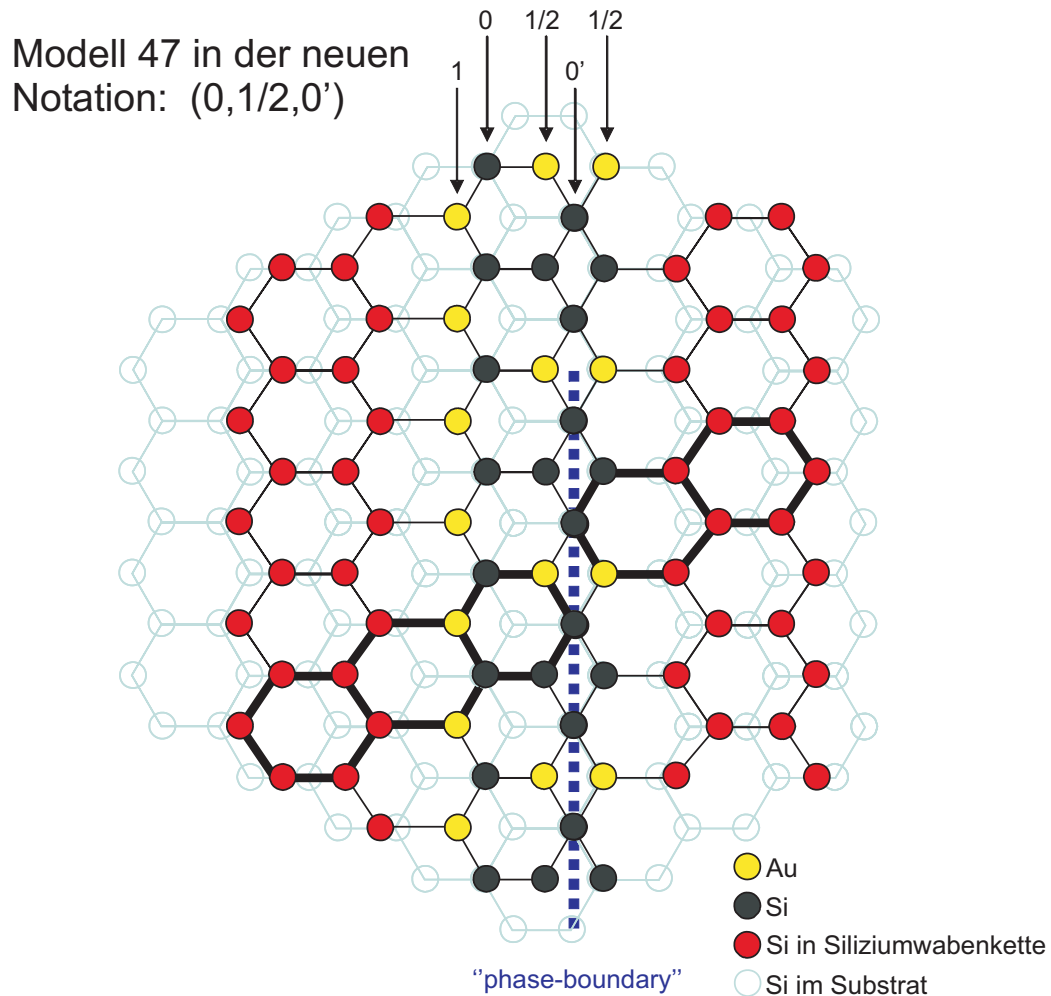


Abbildung 7.5: Phasengrenzenmodell des Modells 47. Benachbarte Siliziumwabenketten (rot) werden durch Waben (dicke Bindungen) aus Gold- und Siliziumatomen verbunden. An der Phasengrenze – engl. "phase-boundary" – weisen Waben der beiden benachbarten Siliziumwabenketten eine Phasenverschiebung von einer Bindungslänge zueinander auf. Es werden für die verschiedenen Modelle der Anteil von Gold und Siliziumatomen entlang einer senkrechten Reihe variiert. 0 bedeutet kein Goldatom, $1/2$ bedeutet an jeder zweiten Stelle ein Goldatom und 1 bedeutet an allen Stellen entlang der Reihe im Abstand von einer Gitterkonstante ein Goldatom. Der Wert 1 für die linke Reihe und $1/2$ für die rechte Reihe werden dabei festgehalten. (Modell von Erwin)

ge tatsächlich ändert, sobald ein Adatom dort kondensiert. Das einfachste Modell ist dabei, dass ein zusätzliches Goldatom mit einem Siliziumatom in der (5×2) -Rekonstruktion die Stelle tauscht und bei diesem Prozess einen Adsorptionsplatz für dieses Siliziumatom erzeugt. Man könnte dies auch als Oberflächenlegierung bezeichnen.

Dies hat folgende Vorteile:

- Die fraktionale Goldbedeckung von 0,443 ML Gold[5] kann problemlos mit zusätzlichen Goldatomen erklärt werden. Der Anteil Silizium, der in Adatomen enthalten ist, entspricht mit im Schnitt 0,036 ML (siehe Abschnitt 5.2.11) recht gut diesem fraktionalen Wert. Diskrepanzen können mit Goldadatomen (siehe Abschnitt 5.2.9, Seite 74) erklärt werden.
- Eine Änderung der Unterlage erklärt am einfachsten, wieso sich ein Adatom nur in der übernächsten Zelle anordnen kann.
- Ein zusätzliches Goldatom kann gut erklären, dass die Merkmale um ein Adatom herum (siehe Abb. 5.10, Seite 60) heller erscheinen. Bei allen Modellen, die innerhalb der Kooperation simuliert worden sind, führte ein erhöhter Goldanteil zu helleren Merkmalen in der Unterlage.
- Röntgenbeugungsmessungen haben für eine spezifische Siliziumatomposition gefunden, dass diese teilweise durch Gold ersetzt wird[70].

Als besten Adsorptionsplatz für Adatome hat sich für die meisten simulierten Modelle ein Adsorptionsplatz zwischen drei Goldatomen der obersten Lage wie im DHCC-Modell (siehe Abschnitt 7.4) ergeben. Deswegen wäre nach dieser Neuinterpretation Modelle zu bevorzugen, die einen Adsorptionsplatz zwischen zwei Goldatomen und einem Siliziumatom besitzen. Das Siliziumatom könnte dann mit einem Goldatom ausgetauscht werden und als Siliziumadatom adsorbieren.

Zusammenfassung

Die goldinduzierte (5×2) -Rekonstruktion auf der Silizium(111)-Oberfläche ist seit ihrer Entdeckung 1969 intensiv untersucht worden. Dennoch fehlt bislang ein akzeptiertes Modell für diese Rekonstruktion. Die Modellierung wird durch vielfältige Störungen in der periodischen Anordnung erheblich erschwert. Diese Störungen sind im Rahmen dieser Arbeit untersucht und zum ersten Mal mit STM-Aufnahmen belegt worden. Über eine einfache Computersimulation zur Erzeugung gestörter Gitter mit anschließender Fouriertransformation sind die Ergebnisse aus den STM-Aufnahmen mit Beugungsbildern korreliert worden.

Als wichtigste Erkenntnis dieser Arbeit induziert Gold auf der Si(111)-Oberfläche eine ganze Familie von Rekonstruktionen – einschließlich der (5×2) -Rekonstruktion, in denen Dichte und Ordnung von Domänenwänden von der Temperatur bzw. Goldbedeckung abhängt. Die (5×2) -Rekonstruktion unterscheidet sich somit deutlich von den von anderen adsorbatinduzierten, anisotrop wachsenden Rekonstruktionen auf dieser Oberfläche.

Im Beugungsbild zeigt die (5×2) -Rekonstruktion scharfe (5×1) -Reflexe. Zusätzlich treten Streifen auf 50 % Brillouin-Zone (BZ) parallel zu den Reflexen in 5-fach Richtung auf. Diese Streifen sind Ausdruck einer Störung der Periodizität entlang der 2-fach Richtung. Im Realraum ist dies auf Bereiche zurückzuführen, die eine Phasenverschiebung um eine Gitterkonstante erzeugen. Ebenfalls wurde beobachtet, dass diese Bereiche nicht von Adatomen besetzt werden. Die Analyse der Beugungsbilder ergibt, dass die Dichte der Phasenverschiebungen weitgehend unabhängig von der Präparationstemperatur ist. Aus der Gittersimulation ergibt sich dazu eine rein

zufällige Verteilung dieser Bereiche.

Befindet sich die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der ebenfalls goldinduzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase höherer Bedeckung, führt dies zu einer wellenartigen Modulation der Streifen im Beugungsbild parallel zur Oberfläche. Die Ausprägung ist dabei nach Streifenprofilanalyse deutlich von der Präparationstemperatur abhängig. Diese Modulation ist das Ergebnis einer erhöhten Goldbedeckung in den (5×2) -rekonstruierten Bereichen, die sich in Form von Goldadatomten und insbesondere Spiegeldomänen äußert, die einer Spiegelung der (5×2) -Einheitszellen mit der 2-fach Richtung als Spiegelachse entsprechen. Deren Dichte variiert lokal stark und ist in der Nähe der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -rekonstruierten Bereiche am größten. Auch die Spiegeldomänen stören die Anordnung entlang der 2-fach Richtung mit einer Phasenverschiebung um eine Gitterkonstante. Aus der Simulation des Beugungsbilds ergibt sich ebenfalls eine erhöhte Dichte von Spiegeldomänen, die im Mittel kleiner als die übrigen Bereiche sind. Wie im Fall der ebenfalls goldinduzierten $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Rekonstruktion besitzt die (5×2) -Rekonstruktion somit schwere, d.h. goldreiche, Domänenwände, die einzelne Domänen der (5×2) -Rekonstruktion voneinander trennen. Die gespiegelten Bereiche erlauben dabei eine dichtere Packung der Goldatome.

Die Ergebnisse aus der Koexistenzphase mit $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ sind gleichzeitig ein Hinweis darauf, dass die (5×2) -Rekonstruktion als eine Oberflächenlegierung mit wechselndem Goldanteil zu sehen ist. Ein erster Legierungsschritt könnte hier die Bildung der Siliziumadatome als das Ergebnis eines Austauschs eines Siliziumatoms der Unterlage mit einem zusätzlichem Goldatom darstellen. Diese Möglichkeit erklärt insbesondere sehr gut die aus der Literatur bekannte Goldbedeckung von im Mittel etwa 4,4 Goldatomen pro (5×2) -Einheitszelle.

Die Siliziumbedeckung in Form von Adatomen wurde dazu passend im Mittel zu 0,036 ML – also 0,36 Adatome pro (5×2) -Einheitszelle – bestimmt, wobei die Einzelergebnisse im Bereich von 0,02 ML bis 0,06 ML gestreut haben. Die Siliziumbedeckung der (5×2) -Rekonstruktion inklusive Siliziumadatome wurde in einer methodisch verbesserten Auswertung in dieser Arbeit zu 1,13 – 1,33 ML bestimmt.

In dieser Arbeit konnte mit einer Analyse von Ketten benachbarter Adatome gezeigt werden, dass diese Siliziumadatome – nur unter Berücksichtigung der repulsiven Wechselwirkung untereinander – rein zufällig verteilt sind. Eine kleine oszillatorische, attraktive Wechselwirkung zwischen den Adatomen, wie von Kirakosian et al.[45] postuliert, kann allerdings nicht ausgeschlossen werden. Diese Oszillation kann jedoch ein Nebenprodukt der Existenz von Phasenverschiebungen auf dieser Oberfläche sein. Diese reduzieren die Adsorptionsplätze für Adatome und führen somit zu einer erhöhten Besetzungswahrscheinlichkeit auf den übrigen Bereichen der (5×2) .

Als letzter experimenteller Aspekt ist die Dynamik des Wachstums der (5×2) -rekonstruierten Bereiche untersucht worden. Die Energetik eines Domänenverdrängungsprozesses wurde anhand von Beobachtungen an LEEM Aufnahmen von Meyer zu Heringdorf diskutiert. Dieser thermisch aktivierte Prozess ist neben der Diffusion der wesentliche Effekt, der zur Bildung einer Oberfläche führt, deren Domänen parallel zu den Stufen ausgerichtet sind. Darauf aufbauend sind zwei Rezepte zur Bildung einer Oberfläche mit nur einer Domäne vorgestellt worden.

Abschließend sind in einer Kooperation mit dem Theoretiker Steven C. Erwin vom Center for Computational Material Science, Naval Research Laboratory in Washington, D.C. eine Vielzahl von Modellen der (5×2) -Rekonstruktion mit DFT berechnet und mit den experimentellen Befunden verglichen worden. Das beste Modell dieser Reihe – bessere Energetik als die bisher publizierten Modelle und eine bessere Übereinstimmung mit dem experimentellen STM-Bild – ist in dieser Arbeit präsentiert worden.

Ausblick

Die hier vorgestellten Ergebnisse sind deutliche Hinweise darauf, dass sich der Goldanteil in der (5×2) -Rekonstruktion abhängig von der Präparationstemperatur erhöhen lässt. Deshalb sollte eine gezielte Messung mit LEEM gemacht werden, die die notwendige Goldbedeckung für eine geschlossene (5×2) -Lage auf der Oberfläche temperaturabhängig bestimmt. Dies sollte ebenso für die Rekonstruktion mit der höheren Goldbedeckung – $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ – durchgeführt werden, da nach Świąch et al. [83] das Bedeckungsverhältnis beider Rekonstruktionen im Bereich 600 K - 1000 K konstant bleibt.

Weiterhin sollte die (5×2) -Phase in Koexistenz mit der $(\sqrt{3} \times \sqrt{3})$ -Phase lokal einer chemischen Analyse unterzogen werden. Denkbar wäre ein deutlicher Kontrast zwischen Bereichen mit unterschiedlicher Goldbedeckung bei STM mit Thermospannung [80] bzw. gleichzeitiger Beleuchtung der Oberfläche mit einer Röntgenquelle [34]. Diese Messungen könnten im Fall der (5×2) -Rekonstruktion zu einem geschlossenen Bild der Oberfläche als Legierungsbildung mit Gold führen.

Um eine mögliche Rolle der Phasenverschiebungen als Relaxation der (5×2) -rekonstruierten Bereiche in 2-fach Richtung zu untersuchen, sollten kleinste Bereiche der (5×2) -Rekonstruktion – d.h. Aufdampfen bei minimalen Temperaturen und Goldbedeckungen – erzeugt werden. Mit dem STM könnte dann untersucht werden, ob (5×2) -rekonstruierte Bereiche unter einer Mindestgröße keine Phasenverschiebungen mehr aufweisen.

Da die undeutliche Auflösung von Phasenverschiebungen im STM-Bild Folge eines thermisch aktivierten Wechsels zwischen zwei Konfigurationen sein kann, wären Aufnahmen bei tiefen Temperaturen interessant.

Anhang A

Abkürzungsverzeichnis

ARPES	Angle-Resolved Photo-Emission Spectroscopy
Au	Gold
BA	Bardeen Approach
BZ	Brillouin-Zone
CCM	Constant-Current Mode
F	Faulted half - Die Hälfte der (7×7) Rekonstruktion mit Stapelfehler
fcc	Face-Centered Cubic
FFT	Fast-Fourier Transformation
LEED	Low-Energy-Electron-Diffraction
LEEM	Low-Energy-Electron-Microscope
MBA	Modified Bardeen Approach
ML	Monolage - entspricht auf Silizium (111) Oberfläche $7,83 \times 10^{14} \text{ Atome/cm}^2$ Bedeckung
RT	Raumtemperatur (ca. 300 K)
Si	Silizium
SPA-LEED	Spot-Profile Analysis - Low-Energy-Electron-Diffraction
STM	Scanning Tunneling Microscope/Microscopy (Rastertunnelmikroskop(ie))
STS	Scanning Tunneling Spectroscopy
U	Unfaulted half - Hälfte der (7×7) Rekonstruktion ohne Stapelfehler
UHV	Ultrahochvakuum
UPS	Ultraviolet Photoemission Spectroscopy

Konstanten

e	$=$	$1,602 \cdot 10^{-19} C$	Elementarladung
\hbar	$=$	$1,054 \cdot 10^{-34} J \cdot s$	Planksches Wirkungsquantum/ 2π
k_B	$=$	$1,380658 \cdot 10^{-23} \frac{J}{K}$	Boltzmann-Konstante
m_e	$=$	$9,1095 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$	Elektronenruhemasse

Literaturverzeichnis

- [1] ALTMANN, K. N., J. N. CRAIN, A. KIRAKOSIAN, J.-L. LIN, D. Y. PETROVYKH, F. J. HIMPSEL und R. LOSIO: *Electronic structure of atomic chains on vicinal Si(111)-Au*. Phys. Rev. B, 64(3):035406, 2001.
- [2] AOKI, K., H. MINODA, Y. TANISHIRO und K. YAGI: *REM Studies of Adsorption-Induced Phase Transitions and Faceting in the Si(111)-Au System*. Surf. Rev. Lett., 5(3-4):653–664, 1998.
- [3] BARDEEN, J.: *Tunneling from a Many-Particle Point of View*. Phys. Rev. Lett., 6:57, 1961.
- [4] BASKI, A. A., J. NOGAMI und C. F. QUATE: *Si(111)- 5×1 -Au reconstruction as studied by scanning tunneling microscopy*. Phys. Rev. B, 41(14):10247–9, 1990.
- [5] BAUER, E.: *The Si(111)-(5×1)Au structure*. Surf. Sci., 250(1-3):L379–82, 1991.
- [6] BENNEWITZ, R., J. N. CRAIN, A. KIRAKOSIAN, J.-L. LIN, J. L. MCCHESENEY, D. Y. PETROVYKH und F. J. HIMPSEL: *Atomic scale memory at a silicon surface*. Nanotechnology, 13(4):499–502, 2002.
- [7] BERMAN, L. E., B. W. BATTERMAN und J. M. BLAKELY: *Structure of submonolayer gold on silicon (111) from X-ray standing-wave triangulation*. Phys. Rev. B, 38(8):5397–405, 1988.
- [8] BINNIG, G. und H. ROHRER: *Scanning tunneling microscopy*. Surf. Sci., 126(1-3):236–44, 1983.

- [9] BISHOP, H. E. und J. C. RIVIÈRE: *Segregation of gold to the silicon (111) surface observed by Auger emission spectroscopy and by LEED*. Br. J. Appl. Phys., J. Phys. D (UK), 2(12):1635–42, 1969.
- [10] BLACKMAND, R.B. und J. TUKEY: *The Measurement of Power Spectra, From the Point of View of Communications Engineering*, Seiten 98–99. Dover Publications, 1959.
- [11] BONNEL, D. A. (Herausgeber): *Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy Theory, Techniques, and Applications*. VCH, 1993.
- [12] CHEN, C. J.: *Introduction to Scanning Tunneling Microscopy*. Oxford University Press, 1993.
- [13] COLLAZO-DAVILA, C., D. GROZEA und L. D. MARKS: *Determination and Refinement of the Ag/Si(111)-(3 × 1) Surface Structure*. Phys. Rev. Lett., 80(8):1678–1681, 1998.
- [14] COLLINS, I. R., J. T. MORAN, P. T. ANDREWS, R. COSSO, J. D. O'MAHONY, J. F. MCGILP und G. MARGARITONDO: *Angle-resolved photoemission from an unusual quasi-one-dimensional metallic system: a single domain Au-induced 5 × 2 reconstruction of Si(111)*. Surf. Sci., 325(1-2):45–49, 1995.
- [15] DAIMON, H., C. CHUNG, S. INO und Y. WATANABE: *A study of Si(111) 5 × 2-Au structures by Li adsorption and their coadsorbed superstructures*. Surf. Sci., 235(2-3):142–55, 1990.
- [16] DAVISSON, C. und L. H. GERMER: *Diffraction of Electrons by a Crystal of Nickel*. Phys. Rev., 30(6):705–740, 1927.
- [17] DUKE, C. B.: *Principles of Semiconductor Surface Reconstruction*. Scanning Microsc., 8(4):753–64, 1994.
- [18] ERWIN, S. C.: *Self-Doping of Gold Chains on Silicon: A New Structural Model for Si(111) - (5 × 2) - Au*. Phys. Rev. Lett., 91(20):206101, 2003.

- [19] ERWIN, S. C. und H. H. WEITERING: *Theory of the "Honeycomb Chain-Channel" Reconstruction of M/Si(111)-(3 × 1)*. Phys. Rev. Lett., 81(11):2296–2299, 1998.
- [20] FALTA, J., A. HILLE, D. NOVIKOV, G. MATERLIK, L. SEEHOFER, G. FALKENBERG und R. L. JOHNSON: *Domain wall structure of Si(111)-($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$) R30° -Au*. Surf. Sci., 330(2):L673–7, 1995.
- [21] FEENSTRA, R. M. und M. A. LUTZ: *Formation of the 5 × 5 reconstruction on cleaved Si(111) surfaces studied by scanning tunneling microscopy*. Phys. Rev. B, 42(8):5391–5394, 1990.
- [22] GALLUS, O., TH. PILLO, P. STAROWICZ und Y. BAER: *Honeycomb chain-channel (HCC) signature in the calcium-induced Si(111)-(3 × 2) surface*. Europhys. Lett., 60(6):903–909, 2002.
- [23] GERFEN, B.: *Messungen mit einem Pyrometer an verschiedenen Strahlungsquellen*. Examensarbeit, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, 1999.
- [24] GOMEZ-RODRIGUEZ, J. M., J.-Y. VEUILLEN und R. C. CINTI: *Scanning tunneling microscopy study of the Si(111)-($\sqrt{3} \times \sqrt{3}$)-Pb mosaic phase*. Surf. Sci., 377-379:45–9, 1997.
- [25] GROZEA, D., E. BENGU und L.D. MARKS: *Surface phase diagrams for the Ag-Ge(111) and Au-Si(111) systems*. Surf. Sci., 461:23–30, 2000.
- [26] GURNETT, M., J. B. GUSTAFSSON, L. J. HOLLEBOOM, K. O. MAGNUSSON, S. M. WIDSTRAND, L. S. O. JOHANSSON, M. K.-J. JOHANSSON und S. M. GRAY: *Core-level spectroscopy study of the Li/Si(111)-3 × 1, Na/Si(111)-3 × 1, and K/Si(111)-3 × 1 surfaces*. Phys. Rev. B, 71(19):195408, 2005.
- [27] HAMANN, C. und M. HIETSCHOLD: *Raster-Tunnel-Mikroskopie*. Akademie Verlag, 1991.

- [28] HAMERS, R. J., R. M. TROMP und J. E. DEMUTH: *Surface electronic structure of Si(111)-(7 × 7) resolved in real space*. Phys. Rev. Lett., 56(18):1972–5, 1986.
- [29] HASEGAWA, T., S. HOSAKA und S. HOSOKI: *In situ observation of gold adsorption onto Si(111)7 × 7 surface by scanning tunneling microscopy*. Jpn. J. Appl. Phys., 31(10B):1492–4, 1992.
- [30] HASEGAWA, T., S. HOSAKA und S. HOSOKI: *Domain growth of Si(111)-(5 × 2) Au by high-temperature STM*. Surf. Sci., 357-358:858–62, 1996.
- [31] HASEGAWA, T. und S. HOSOKI: *Intrarow diffusion of Au atoms in the Si(111)-(5 × 2) Au structure*. Phys. Rev. B, 54(15):10300–3, 1996.
- [32] HASEGAWA, T., S. HOSOKI und K. YAGI: *Stable phase boundaries between the 7 × 7 and the 5 × 2 Au structures on a Si(111) surface studied by high-temperature STM*. Surf. Sci., 355(1-3):L295–L299, 1996.
- [33] HASEGAWA, T., K. TAKATA, S. HOSAKA und S. HOSOKI: *Au-induced reconstructions of the Si(111) surface*. J. Vac. Sci. Technol. A, 8(1):241–4, 1990.
- [34] HASEGAWA, Y., K. TSUJI, K. NAKAYAMA, K. WAGATSUMA und T. SAKURAI: *X-ray source combined ultrahigh-vacuum scanning tunneling microscopy for elemental analysis*. J. Vac. Sci. Technol. B, 18(6):2676–2680, 2000.
- [35] HENZLER, M. und W. GÖPEL: *Oberflächenphysik des Festkörpers*. Teubner Studienbücher, 1994.
- [36] HERINGDORF, F.-J. MEYER ZU und M. HORN VON HOEGEN: *Reciprocal space mapping by spot profile analyzing low energy electron diffraction*. Rev. Sci. Instrum., 76(8):085102, 2005.
- [37] HILD, R.: *STM-Untersuchungen zur atomaren Struktur der Gold-induzierten Rekonstruktion auf vicinalem Si(001)*. Diplomarbeit, Universität Hannover, 1997-1998.

- [38] HILL, I. G. und A. B. MCLEAN: *Role of Si adatoms in the Si(111)-Au (5×2) quasi-one-dimensional system*. Phys. Rev. B, 55(23):15664–15668, 1997.
- [39] HIMPSEL, F. J., K. N. ALTMANN, R. BENNEWITZ, J. N. CRAIN, A. KIRAKOSIAN, J.-L. LIN und J. L. MCCHESENEY: *One-dimensional electronic states at surfaces*. J. Phys.-Condens. Mat., 13(49):11097–11113, 2001.
- [40] HOEGEN, M. HORN VON: *Growth of semiconductor layers studied by spot profile analysing low energy electron diffraction - Part I*. Z. Kristallogr., 214:591–629, 1999.
- [41] HUANG, J. H. und R. S. WILLIAMS: *Surface structure of Si(111)- 5×1 -Au characterized by impact collision ion scattering spectroscopy*. Surf. Sci., 204(3):445–54, 1988.
- [42] ICHIKAWA, M., T. DOI und K. HAYAKAWA: *Observation of Si(111) and gold-deposited Si(111) surfaces using micro-probe reflection high-energy electron diffraction*. Surf. Sci., 159(1):133–148, 1985.
- [43] KANG, M.-H. und J. Y. LEE: *Theoretical investigation of the Au/Si(111)- (5×2) surface structure*. Surf. Sci., 531(1):1–7, 2003.
- [44] KHRAMTSOVA, E. A., H. SAKAI, K. HAYASHI und A. ICHIMIYA: *Study of the Si(111) " 5×1 "-Au surface using reflection high-energy electron diffraction and scanning tunneling microscopy*. Jpn. J. Appl. Phys., 37(12A):6511–18, 1998.
- [45] KIRAKOSIAN, A., R. BENNEWITZ, F. J. HIMPSEL und L. W. BRUCH: *Correlations in a one-dimensional lattice fluid on Si(111) 5×2 -Au*. Phys. Rev. B, 67(20):205412, 2003.
- [46] KIRAKOSIAN, A., J. N., CRAIN, J.-L. LIN, J. L. MCCHESENEY, D. Y. PETROVYKH, F. J. HIMPSEL und R. BENNEWITZ: *Silicon adatoms on the Si(1 1 1) (5×2)-Au surface*. Surf. Sci., 532-535:928–933, 2003.

- [47] KOSOLOBOV, S. S., S. A. SONG, L. I. FEDINA, A. K. GUTAKOVSKII und A. V. LATYSHEV: *Instability of the Distribution of Atomic Steps on Si(111) upon Submonolayer Gold adsorption at High Temperatures*. JETP Lett., 81(3):117–121, 2005.
- [48] KUBO, O., J.-T. RYU, H. TANI, T. HARADA, M. KATAYAMA, K. OURA, A. A. SARANIN, A. V. ZOTOV und V. G. LIFSHITS: *Mg-induced Si(111)- (3×2) reconstruction studied by scanning tunneling microscopy*. Surf. Sci. Lett., 415(1-2):971–975, 1998.
- [49] KÄHLER, D.: *Facettierung von vizinalen Si(001)-Flächen bei Adsorption von Gold*. Diplomarbeit, Universität Hannover, 1997.
- [50] LE LAY, G.: *Physics and electronics of the noble-metal/elemental-semiconductor interface formation: a status report*. Surf. Sci., 132(1-3):169–204, 1983.
- [51] LE LAY, G. und J.P. FAURIE: *AES Study of the very first stages of condensation of gold films on silicon(111) surfaces*. Surf. Sci., 69:295–300, 1977.
- [52] LEE, G., SUKLYUN HONG, H. KIM und J.-Y. KOO: *Atomic structure of the Ba-induced Si(111) 3×2 reconstruction studied by LEED, STM, and ab initio calculations*. Phys. Rev. B, 68(11):115314, 2003.
- [53] LIPSON, H. und K. E. SINGER: *Disorder in a film of gold deposited on silicon: investigation by low-energy electron diffraction*. J. Phys. C, Solid State Phys. (UK), 7(1):12–14, 1974.
- [54] LOSIO, R., K. N. ALTMANN und F. J. HIMPSEL: *Continuous transition from two- to one-dimensional states in Si(111)- (5×2) -Au*. Phys. Rev. Lett., 85(4):808–811, 2000.
- [55] MARKS, L. D. und R. PLASS: *Atomic structure of Si(111)- (5×2) -Au from high resolution electron microscopy and heavy-atom holography*. Phys. Rev. Lett., 75(11):2172–5, 1995.

- [56] MATSUDA, I., M. HENGESBERGER, F. BAUMBERGER, T. GREBER, H. YEOM und J. OSTERWALDER: *Reinvestigation of the band structure of the Si(111) 5×2 -Au surface*. Phys. Rev. B, 68(19):195319, 2003.
- [57] MCCHESENEY, J. L., J. N. CRAIN, V. PEREZ-DIESTE, F. ZHENG, M. C. GALLAGHER, M. BISSEN, C. GUNDELACH und F. J. HIMPSEL: *Electronic stabilization of a 5×4 dopant superlattice on Si(111) 5×2 -Au*. Phys. Rev. B, 70(19):195430, 2004.
- [58] MCGILP, J. F. und Y. YEH: *Probing the buried Metal-Semiconductor Interface by optical second harmonic generation: Au on Si(111) and Si(100)*. Solid State Commun., 59(2):91–94, 1986.
- [59] NAGAO, T., C. VOGES, H. PFNÜR, M. HENZLER, S. INO, F. SHIMOKOSHI und S. HASEGAWA: *Diffraction from small antiphase domains: $\alpha - \sqrt{3} \times \sqrt{3}$, $\beta - \sqrt{3} \times \sqrt{3}$, 6×6 phases of Au adsorbed Si(111)*. Appl. Surf. Sci., 130-132:47–53, 1998.
- [60] O'MAHONY, J. D., C. H. PATTERSON, J. F. MCGILP, F. M. LEIBSLE, P. WEIGHTMAN und C. F. J. FLIPSE: *The Au-induced 5×2 reconstruction on Si(111)*. Surf. Sci., 277(1-2):L57–62, 1992.
- [61] PANDEY, K. C.: *New dimerized-chain model for the reconstruction of the diamond (111)-(2×1) surface*. Phys. Rev. B, 25(6):4338–41, 1982.
- [62] PARK, S. J., H. W. YEOM, J. R. AHN und I.-W. LYU: *Atomic-Scale Phase Coexistence and Fluctuation at the Quasi-One-Dimensional Metal-Insulator Transition*. Phys. Rev. Lett., 95(12):126102, 2005.
- [63] QIAN, G.-X. und D. J. CHADI: *Total-energy calculations on the Takayanagi model for the Si(111) 7×7 surface*. 4(4):1079–82, 1986.
- [64] REDHEAD, P. A.: *Vacuum science and technology: 1950–2003*. J. Vac. Sci. Technol. A, 21(5):S12–S14, 2003.
- [65] RIIKONEN, S. und D. SÁNCHEZ-PORTAL: *First-principles study of the atomic and electronic structure of the Si(111)-(5×2)-Au surface reconstruction*. Phys. Rev. B, 71(23):235423, 2005.

- [66] SAKAI, H., E. A. KHRAMTSOVA und A. ICHIMIYA: *Metastable ordering of domain walls into Si(111) $(2\sqrt{21} \times 2\sqrt{21}) R(\pm 10.9^\circ)$ -Au structure studied by reflection high energy electron diffraction and scanning tunneling microscopy.* Jpn. J. Appl. Phys., 37(6B):L755–7, 1998.
- [67] SARANIN, A. A., A. V. ZOTOV, V. G. LIFSHITS, J.-T. RYU, O. KUBO, H. TANI, T. HARADA, M. KATAYAMA und K. OURA: *Ag-induced structural transformations on Si(111): quantitative investigation of the Si mass transport.* Surf. Sci., 429(1):127–132, 1999.
- [68] SAUERBREY, G.: *Verwendung von Schwingquarzen zur Wägung dünner Schichten und Mikrowägung.* Z. Phys., 155:206–222, 1959.
- [69] SCHAFER, J., S. C. ERWIN, M. HANSMANN, Z. SONG, E. ROTENBERG, S. D. KEVAN, C. S. HELLBERG und K. HORN: *Random registry shifts in quasi-one-dimensional adsorbate systems.* Phys. Rev. B, 67(8):085411, 2003.
- [70] SCHAMPER, CH., W. MORITZ, H. SCHULZ, R. FEIDENHANS'L, M. NIELSEN, F. GREY und R. L. JOHNSON: *Static lattice distortions and the structure of Au/Si(111)-(5 × 1): An x-ray-diffraction study.* Phys. Rev. B, 43(14):12130–3, 1991.
- [71] SCHEITHAUER, U., G. MEYER und M. HENZLER: *A new LEED instrument for quantitative spot profile analysis.* Surf. Sci., 178(1-3):441–451, 1986.
- [72] SCHWABL, F.: *Quantenmechanik.* Springer Verlag, 4 Auflage, 1993.
- [73] SEAH, M. P. und W. A. DENCH: *Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces: A Standard Data Base for Electron Inelastic Mean Free Paths in Solids.* Surf. Interface Anal., 1(1):2–11, 1979.
- [74] SEIFERT, C., R. HILD, M. HORN VON HOEGEN, R. A. ZHACHUK und B. Z. OLSHANETSKY: *Au induced reconstructions on Si(111).* Surf. Sci., 488(1-2):233–8, 2001.

- [75] SHIBATA, A., Y. KIMURA und K. TAKAYANAGI: *Si(111) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Au growing on a 7×7 surface*. Surf. Sci., 273(1-2):L430–4, 1992.
- [76] SHIBATA, M., I. SUMITA und M. NAKAJIMA: *Scanning-tunneling-microscopy study of initial stages of Au adsorption on vicinal Si(111) surfaces*. Phys. Rev. B, 53(7):3856–60, 1996.
- [77] SHIBATA, M., I. SUMITA und M. NAKAJIMA: *Structure and width of Au-adsorbed narrow Si(111) terraces*. Phys. Rev. B, 57(3):1626–30, 1998.
- [78] SHKLYAEV, A. A., M. SHIBATA und M. ICHIKAWA: *Kinetics of tip-induced island growth on Si(111) with a scanning tunneling microscope*. J. Vac. Sci. Technol. B, 18(5):2339–2343, 2000.
- [79] STEKOLNIKOV, A., J. FURTHMÜLLER und F. BECHSTEDT: *In/Si(111): Chain structure and metal-insulator transition*. Vortrag DPG, 2006.
- [80] STOVNENG, J. A. und P. LIPAVSKY: *Thermopower in scanning-tunneling-microscope experiments*. Phys. Rev. B, 42(14):9214–9216, 1990.
- [81] STROSCIO, J. A., R. M. FEENSTRA und A. P. FEIN: *Electronic structure of the Si(111) 2×1 surface by scanning-tunneling microscopy*. Phys. Rev. Lett., 57(20):2579–82, 1986.
- [82] STROSCIO, J. A., R. M. FEENSTRA und A. P. FEIN: *Imaging electronic surface states in real space on the Si(111) 2×1 surface*. 5(4 pt. 1):838–41, 1987.
- [83] SWIECH, W., E. BAUER und M. MUNDSCHAU: *Low-energy electron microscopy study of the system Si(111)-Au*. Surf. Sci., 253(1-3):283–296, 1991.
- [84] TAKAHASHI, S., Y. TANISHIRO und K. TAKAYANAGI: *Short range orders of an adsorbed layer: gold on the Si(111) 7×7 surface*. Surf. Sci., 242(1-3):73–80, 1991.

- [85] TAKAYANAGI, K.: *Reconstruction of surface Si(111)- 7×7 superlattice structure*. Solid State Phys., 21(4):220–6, 1986.
- [86] TAKAYANAGI, K., Y. TANISHIRO, S. TAKAHASHI und M. TAKAHASHI: *Structure analysis of Si(111)- 7×7 reconstructed surface by transmission electron diffraction*. Surf. Sci., 164(2-3):367–92, 1985.
- [87] TANISHIRO, Y., K. YAGI und K. TAKAYANAGI: *Gold adsorption processes on Si(111) 7×7 studied by in-situ reflection electron microscopy*. Surf. Sci., 234(1-2):37–42, 1990.
- [88] TAYLOR, H. M. und S. KARLIN: *An Introduction To Stochastic Modeling*. Academic Press, 3rd Auflage, 1998.
- [89] TERSOFF, J. und D. R. HAMANN: *Theory of the scanning tunneling microscope*. Phys. Rev. B, 31(2):805–813, 1985.
- [90] TSUKANOV, D. A., S. V. RYJKOV, O. A. UTAS und V. G. LIFSHITS: *The formation of Si(1 1 1) 5×2 -Au single-domain surface phase by a surface diffusion*. Appl. Surf. Sci., 234:297–301, 2004.
- [91] UCHIHASHI, T., C. OHBUCHI, S. TSUKAMOTO und T. NAKAYAMA: *One-Dimensional Surface Reconstruction as an Atomic-Scale Template for the Growth of Periodically Striped Ag Films*. Phys. Rev. Lett., 96(13):136104, 2006.
- [92] WAVEMETRICS: *Igor Pro*.
- [93] WIETHOFF, C.: *Gold- und Silberinduzierte Rekonstruktionen auf Silizium(111) Oberflächen*. Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen, 2004.
- [94] WOOD, E. A.: *Vocabulary of Surface Crystallography*. J. Appl. Phys., 35(4):1306–1312, 1964.
- [95] (WWW.NANOTEC.ES), NANOTEC: *WSxM*.

- [96] YAGI, Y., K. KAKITANI und A. YOSHIMORI: *Correlation function of adsorbed Au chain on Si(111) surface*. Surf. Sci., 356(1-3):47–52, 1996.
- [97] YAMAZAKI, S., I. MATSUDA, H. OKINO, H. MORIKAWA und SHUJI HASEGAWA: *Electrical Conduction on Various Au/Si(111) Surface Superstructures*. E-J. of Surf. Sci. and Nanotech., 3:497–502, 2005.
- [98] YOON, H. S., J. E. LEE, S. J. PARK, I.-W. LYO und M.-H. KANG: *Electronic and geometric structure of Si(111)- 5×2 -Au*. Phys. Rev. B, 72(15):155443, 2005.
- [99] YOON, H. S., S. J. PARK, J. E. LEE, C. N. WHANG und I.-W. LYO: *Novel electronic structure of inhomogeneous quantum wires on a Si surface*. Phys. Rev. Lett., 92(9):096801–1, 2004.
- [100] YUHARA, J., M. INOUE und K. MORITA: *Phase transition of the Si(111)-Au surface from $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ to 5×1 structure studied by means of the low-energy electron diffraction, Auger electron spectroscopy, and Rutherford backscattering spectroscopy techniques*. J. Vac. Sci. Technol. A, 10(2):334–338, 1992.
- [101] ZAHL, P., M. BIERKANDT, S. SCHRODER und A. KLUST: *The flexible and modern open source scanning probe microscopy software package [small-caps GXSM]*. Rev. Sci. Instrum., 74(3):1222–1227, 2003.

Danksagung

Professor Horn-von Hoegen möchte ich für die Ermöglichung meiner Doktorarbeit danken. Frank Meyer zu Heringdorf möchte ich für die vielen Diskussionen über die komplexe (5×2) -Rekonstruktion und nicht zuletzt für die Anregung, diese zu untersuchen, danken. Steve Erwin möchte ich für seine immerwährende Bereitschaft, neue Modelle der (5×2) -Rekonstruktion zu rechnen, danken. Meinem ehemaligen Diplomanden Christian Wiethoff und Thomas Payer möchte ich für ergänzende Messungen danken. Für intensives Diskutieren und noch viel engagierterem Probelesen möchte ich ganz besonders Thorsten Wagner danken. Ebenso in dieser Rubrik verdient gemacht hat sich das Lektorenteam AG Horn-von Hoegen und Bastian Weyers. Für Diskussionen zwischen Tür und Angel möchte ich ausdrücklich noch Peter Kury danken. Alle noch verbliebenen Fehler und Bandwurmsätze gehen natürlich ganz allein auf mein Konto.

Meiner Freundin möchte ich danken für die vielen Gespräche und all das, was hier unausgesprochen bleiben muss. Sie hat mir das Gefühl gegeben nicht nur einen Zwillingsbruder, sondern auch eine Seelenpartnerin zu besitzen. Über große räumliche Entfernung hat sie mich immer größte Nähe verspüren lassen. Mit ihrem Optimismus hat sie mich den größten Teil der Doktorarbeit über begleitet. Danke, Tammy!

Bei allen Leuten, die ich hier im Eifer des Zusammenschreibens vergessen habe, möchte ich mich an an dieser Stelle entschuldigen – und nicht mit der heutzutage häufigen Unsitte um Verständnis bitten – Sorry!